

## Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle

John Paul Hermann Kettler







Forschungszentrum Jülich GmbH  
Institut für Energieforschung (IEF)  
Sicherheitsforschung und Reaktortechnik (IEF-6)

# **Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle**

John Paul Hermann Kettler

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 82

---

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-665-1

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.  
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der  
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten  
sind im Internet über <<http://dnb.d-nb.de>> abrufbar.

Herausgeber und Vertrieb: Forschungszentrum Jülich GmbH  
Zentralbibliothek, Verlag  
D-52425 Jülich  
Telefon (02461) 61-5368 · Telefax (02461) 61-6103  
E-Mail: [zb-publikation@fz-juelich.de](mailto:zb-publikation@fz-juelich.de)  
Internet: <http://www.fz-juelich.de/zb>

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2010

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment Band / Volume 82

D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2010)

ISSN 1866-1793  
ISBN 978-3-89336-665-1

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL)  
unter <http://www.fz-juelich.de/zb/juwel>

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder  
in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder  
unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.





## **Dr. Kornelius Kroth**

(\* 12. November 1946 in Andernach; † 29. 11 2008 in Linnich)

Diese Arbeit ist Herrn Dr. Kroth gewidmet. Auf seine typisch rheinische Art hat er dazu beigetragen, dass ich meine Tätigkeit im Forschungszentrum Jülich aufgenommen habe. Über ein Jahr durfte ich mit ihm zusammenarbeiten, wodurch ich eine sehr gute Einführung in das zum Teil recht komplexe Arbeitsthema erhalten habe. Die Arbeit mit Herrn Kroth hat mir immer Spaß gemacht!

## Kurzzusammenfassung

Die Endlagerung radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung steht in Deutschland vor ihrer endgültigen Lösung. Das Endlager -Schachanlage Konrad- wird derzeit in Salzgitter errichtet und soll bis zum Jahr 2014 betriebsbereit sein. Radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung stammen aus Kernkraftwerken, aus der Medizin oder aus Forschungseinrichtungen. Die Anforderungen des Planfeststellungsbeschlusses des Niedersächsischen Umweltministeriums vom 22. Mai 2002 zum Endlager Konrad verpflichten die Abfallverursacher und deren Entsorgungsdienstleister zur Einhaltung der Grenzwerte von chemotoxischen Gefahrenstoffen und deren Dokumentation. Endzulagernde Abfälle müssen somit bzgl. ihres radioaktiven Inventars, sowie dem Gehalt an wassergefährdenden Stoffen charakterisiert werden. Insbesondere bei Altabfällen, die vor dem Jahre 1990 angefallen sind, besteht in diesem Zusammenhang ein großer Nachholbedarf in der Dokumentation.

Bisherige Verfahren zur Charakterisierung der Altabfälle bedürfen der Öffnung der Lagerbehälter (200 l Stahlfass), wodurch ein hoher Aufwand und Zusatzkosten entstehen. Die Kosten ergeben sich durch notwendige Maßnahmen zur Vermeidung von Kontaminationen, beim Strahlenschutz und beim wiederverschließen bzw. erneuten Konditionieren (Verpacken) der Abfälle.

In der vorliegenden Arbeit wurde ein Prototypsystem auf Basis der Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (PGNAA) mit 14 MeV Neutronen entwickelt, mit dem Ziel großvolumige Proben (25 bzw. 50 l) zu charakterisieren. Die Signatur der Elementzusammensetzung wird dabei gammaspektrometrisch erfasst. Im Fokus der Untersuchungen standen neben der Machbarkeit eines solchen Systems, vor allem der Neutronen- und Photonentransport innerhalb der großvolumigen Proben. Die Herausforderung besteht darin, die Selbstabschirmung der Neutronen und Photonen in Abhängigkeit von der Probenzusammensetzung zu verstehen. In diesem Zusammenhang wurden verschiedene computergestützte Berechnungen (MCNP) und Experimente durchgeführt.

Es wurden verschiedene homogene und inhomogene Probenfässer mit bekannter Zusammensetzung hergestellt, um die Qualifizierung des Prototypsystems im Hinblick auf die Analyse unbekannter Proben zu demonstrieren. Die Proben wurden parallel mit anderen Messsystemen und Verfahren charakterisiert, um die Ergebnisse mit dem PGNAA-Prototypsystem zu verifizieren. Am Ende der Arbeit wurden die Nachweisgrenzen ausgewählter Elemente für verschiedene Bestrahlungs- und Messbedingungen bestimmt. Es wurde dabei Bezug auf die für das Endlager Konrad relevanten Elemente genommen.

Die mit dem PGNAA-Prototypsystems gewonnen Ergebnisse zeigen, dass eine zerstörungsfreie Charakterisierung von großvolumigen Probenfässern möglich ist. Auf Grundlage der im Rahmen dieser Arbeit erworbenen theoretischen und experimentellen Erkenntnisse wird ein Routine-Prüfverfahren für die Charakterisierung von 200 l Fässern entwickelt.

## Abstract

In Germany, stringent official regulations govern the handling and final storage of radioactive waste. For this reason, the Federal Government has opted for final storage of radioactive waste with negligible heat generation in deep geological formations. At present the Konrad mine in Saltzgitter will be rebuilt as a final disposal, the start of operation is scheduled for 2014. Radioactive waste with negligible heat generation originates from the operation and decommissioning of nuclear power plants, the medical sector or from research establishments. The requirements of the planning approval decision to build up the disposal Konrad, published on the 22<sup>th</sup> of May 2002, obligate the waste producer to consider the limits for chemotoxic substances and to document the waste content. Before the radioactive waste can be stored in the final disposal, it is necessary to characterize the waste composition, relating to the concentration of water polluting substances. In particular for the wastes produced in the year before 1990, the so-called old wastes, there is a lack of documentation.

The chemotoxicity of old wastes can mostly only be characterized by time consuming and destructive methods. Furthermore these methods produce high costs, which depend on the arrangements to avoid contamination, to comply with the radiation protection and for the conditioning of the wastes.

A prototype system, based on the Prompt-Gamma-Neutron-Activation-Analysis (PGNAA) with 14 MeV neutrons, has been developed in this work. This system allows the characterization of large samples, like 25 and 50 l drums. The signature of the element composition is in this processed by gamma-ray spectroscopy. This work was focused, in addition to the feasibility of the system, to the neutron and photon transport in large samples. Therefore the neutron and photon self-absorption in dependence of the sample composition were the main part of interest. Computer simulations (MCNP) and experiments were performed to understand this correlation.

Several homogeneous and inhomogeneous sample drums were produced for the qualification of the prototype system. The sample drums were characterized with different systems and methods to verify the results of the PGNAA-Prototype-System. At the end of the present work, the detection limits of selected elements for different irradiation and measurement conditions were determined. The element compilation refers to relevant elements for the final disposal Konrad.

The results of the measurements, which were realized with the PGNAA-Prototype-System, show, that a non-destructive characterization of large samples is possible. Furthermore a routine test procedure, based on the results of the present work, is in development to characterize 200 l drums.





# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung und Zielsetzung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Die Neutronen-Aktivierungs-Analyse</b>	<b>5</b>
2.1	Historische Entwicklung der Neutronen-Aktivierungs-Analyse	6
2.2	Einführung in die NAA-Methoden	6
2.3	Neutronen-Klassifizierung	8
<b>3</b>	<b>Neutronenreaktionen und Neutronenquellen</b>	<b>11</b>
3.1	Wechselwirkungen von Neutronen mit Materie	12
3.1.1	Neutroneneinfang mit simultaner Photonenemission	14
3.1.2	Thermalisierung	15
3.1.3	Nukleare Reaktionen mit schnellen Neutronen	15
3.1.4	Neutronen Absorption und Streuung in der Probe (Selbstabschirmung)	16
3.2	Zeitaufgelöste Neutronenphysik	17
3.3	Neutronenquellen	18
3.3.1	Forschungsreaktor	18
3.3.2	Spallationsquelle	18
3.3.3	Radioisotope - $^{252}\text{Cf}$ und $^{241}\text{Am}$ - $^9\text{Be}$	19
3.3.4	(D-D) und (D-T) Neutronengenerator	20
<b>4</b>	<b>Photonenreaktion und Detektorsysteme</b>	<b>25</b>
4.1	Wechselwirkungen von Photonen mit Materie	26
4.1.1	Der Photoelektrische-Effekt	26
4.1.2	Der Compton-Effekt	27
4.1.3	Die Paarbildung	28
4.1.4	Abschirmung der Gamma-Strahlung	29
4.2	Detektoren in der Gamma-Spektroskopie	30
4.2.1	Effizienz des Detektors	31
4.2.2	Detektor Typen – Halbleiter-Detektoren	32
<b>5</b>	<b>Das PGNAA-Verfahren</b>	<b>35</b>
5.1	Physikalische Grundlagen der PGNAA mit schnellen Neutronen	36
5.2	Zyklische Neutronen-Aktivierung	38
<b>6</b>	<b>Simulation mit MCNP</b>	<b>43</b>
6.1	Der Computer Code MCNP – Monte-Carlo-Verfahren	44
6.2	Nukleare Daten- und Wirkungsquerschnittbibliotheken	45

6.3	Aufbau der MCNP-Input-Datei	45
6.3.1	Geometriedefinition des MCNP-Modells	45
6.3.2	Die Materialdefinition der MCNP-Geometrie	46
6.3.3	Definition der Primärteilchenquelle	47
6.3.4	Aufgabenstellung für die Simulation – Definition der Tally	47
6.4	Das MCNP-Modell der PGNAA-Anlage	48
<b>7</b>	<b>Instrumenteller Aufbau</b>	<b>51</b>
7.1	Die Experimentierhalle und der Kontrollraum	52
7.1.1	Genehmigung für den Betrieb des Neutronengenerators	54
7.1.2	MCNP-Simulation zur Bestimmung der Äquivalentdosen im Strahlungsumfeld der PGNAA-Anlage	55
7.1.3	Messung der Ortsdosisleistung in den benachbarten Räumen der Experimentierhalle	57
7.1.4	Bestimmung der Personen-Tiefendosis $H_p(10)$ im Umfeld der Graphitkammer	58
7.2	Das PGNAA-Prototypsystem	60
7.3	Die Graphitkammer – Moderator und Reflektor	60
7.4	Der Neutronengenerator	61
7.5	Das Spektrometer	64
7.5.1	Die Nuklearelektronik	65
7.5.2	Optimierung der Nuklearelektronik	66
7.5.3	Detektor-Vergleich	69
7.5.4	Neutronen-Aktivierung des Germanium-Kristalls	72
7.5.5	MCNP-Studie zu Neutronenabschirmung des Detektors	75
7.5.6	Abschirmung thermischer Neutronen	78
7.5.7	Herstellung der $^6\text{Li}$ -Abschirmung	80
7.5.8	Kristallschäden durch Kernreaktionen mit schnellen Neutronen	87
7.5.9	Abschirmung schneller Neutronen	89
<b>8</b>	<b>Energie- und Effizienzkalibrierung</b>	<b>93</b>
8.1	Energiekalibrierung	94
8.2	Untergrundspektrum und Punkteffizienz bis 3 MeV	94
8.3	Bestimmung der Detektor-Punkteffizienz bis 10 MeV	96
8.4	Die Photopeak-Effizienz für eine großvolumige homogene Probe	99
8.5	MCNP-Studie zur Berechnung der Photopeak-Effizienz für ein 50-l-Volumen	104
<b>9</b>	<b>Probenherstellung</b>	<b>107</b>
9.1	Homogene Betonproben mit definierter Schwermetallkonzentration	108
9.2	Herstellung der verschiedenen Probenfässer	111



<b>10</b>	<b>Charakterisierung verschiedener Proben</b>	<b>115</b>
10.1	Hintergrundspektrum der Graphitkammer – Nullprobenmessung	116
10.2	Aktivierung von Einzelproben	117
10.2.1	Harnstoff	117
10.2.2	Natriumchlorid	118
10.2.3	Blei, Cadmium, Quecksilber	118
10.2.4	Gadolinium	120
10.2.5	Strontium	121
10.3	Charakterisierung verschiedener 25-l-Probenfässer	121
10.3.1	Leeres Stahlfass	121
10.3.2	Probenfass 1 – Trockener Beton	122
10.3.3	Probenfass 2 – Trockener Beton mit Schwermetallen	123
10.3.4	Probenfass 3 – Betonfass mit festen Schwermetallabfällen	124
10.3.5	Probenfass 4 – Metallspäne aus der Mechanischen-Werkstatt	125
10.4	Charakterisierung einer Erdreich-Probe	126
10.5	Bestrahlung inhomogener Probenzusammenstellungen	128
10.6	Untersuchung einer Cadmium-Probe in einem betonierten Stahlfass	130
<b>11</b>	<b>Bestimmung der Neutronenflüsse</b>	<b>151</b>
11.1	MCNP-Studie des Neutronenspektrums	152
11.2	Bestimmung thermischer und epithermischer Neutronenspektren mit Resonanzsonden	155
11.3	Neutronenfluss in einer Beton-Probe	158
11.4	Das Stahlfass als Neutronenmonitor	158
11.5	Der thermische Neutronenfluss in Abhängigkeit von der Probenzusammensetzung	161
<b>12</b>	<b>Nachweisgrenzen</b>	<b>165</b>
12.1	Definition der Nachweisgrenze – Werte etablierter PGNAA-Systeme	166
12.2	Nachweisgrenzen des PGNAA-Prototypsystems	166
<b>13</b>	<b>Diskussion und Ausblick</b>	<b>171</b>
13.1	Zyklische Neutronen-Aktivierung	172
13.2	Quantitativer Nachweis – Inhomogene großvolumige Proben	173
13.3	Hochskalierung des Systems für die Charakterisierung von 200-l-Fässern	174
<b>14</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>175</b>
<b>Anhang</b>		<b>177</b>
A1	Herleitung der zyklischen Neutronen-Aktivierung	177
A2	MCNP-Input-Datei für das PGNAA-System	179
A3	Das Prompt-Gamma-Spektrum einer sehr großen Cadmiummenge	183

---

A4	Elementanalyse des $^6\text{Li}$ -Metalls aus Oak Ridge	184
A5	Analyse des schweren Wassers	184
A6	Aktivitäten der verwendeten Standard-Punktquellen	185
A7	Ergebnisse der Analyse für die Beton-Zusammensetzung	185
A8	Wirkungsquerschnitte von Gold	187
A9	Absolute Effizienz des „Low-Level“-Messplatz-Detektors	187
<b>Abbildungsverzeichnis</b>		<b>189</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>		<b>193</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>		<b>195</b>
<b>Danksagung</b>		<b>205</b>

# 1 Einleitung und Zielsetzung

Seit der Entdeckung der Kernspaltung von Uran durch Otto Hahn<sup>1</sup>, Lise Meitner und Fritz Straßmann im Jahre 1938 hat die friedliche Nutzung der Kernenergie rasante Fortschritte erzielt. Die damit verbundene sichere Endlagerung der radioaktiven Abfälle stellt eine wichtige Herausforderung dar. Das Endlagerkonzept der Bundesrepublik Deutschland sieht vor, dass diese Abfälle im tiefen geologischen Untergrund dauerhaft deponiert werden sollen, um sie von der Biosphäre fern zuhalten [Krause1972; BfS2009]. Da bei der Endlagerung die durch den radioaktiven Zerfall entstehende Wärmeentwicklung für die Geologie von Bedeutung ist, werden die Abfälle in wärmeentwickelnde (hochradioaktive) Abfälle und Abfälle mit keiner bzw. vernachlässigbarer Wärmeentwicklung (schwach- und mittelfradioaktiv) eingeteilt. Letztere machen einen Volumenanteil von mehr als 90 % der insgesamt in der Bundesrepublik anfallenden Abfallmenge aus, enthalten jedoch weniger als 0,1 % der bereits angefallenen und noch anfallenden Radioaktivität [BfS2009].

Für die Endlagerung von Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung wurde das stillgelegte Eisenerzbergwerk Konrad in Salzgitter ausgewählt, da es in den Stollen des Bergwerks besonders trocken ist. Das Ende August 1982 eingeleitete atomrechtliche Planfeststellungsverfahren wurde am 05.06.2002 mit der Zustellung des Planfeststellungsbeschlusses [BfS2002] durch das Niedersächsische Umweltministerium (NMU) beendet. Anschließend dauerte es noch einmal 5 Jahre bis dieser im Jahr 2007 durch das Urteil des Bundesverfassungsgerichts endgültig rechtskräftig wurde.

Die Schachtanlage Konrad hat eine Tiefe von bis zu 1300 m. Im Planfeststellungsbeschluss wurde ein endlagerbares Abfallgebindevolumen in Höhe von maximal 303.000 m<sup>3</sup> festgelegt, mit einer maximalen gesamt  $\alpha$ -Aktivität von  $1,5 \cdot 10^{17}$  Bq und einer  $\beta/\gamma$ -Aktivität von  $5 \cdot 10^{18}$  Bq am Ende der Betriebsperiode. Es werden hier neben den radioaktiven Abfällen kerntechnischer Anlagen auch Abfälle aus Forschung, Medizin und Industrie eingelagert. Diese werden zum Teil in den Landessammelstellen der Bundesländer und den Forschungszentren zwischengelagert.

Bei der Entsorgung und Einlagerung radioaktiver Abfälle ist der Schutz von Mensch und Umwelt oberster Grundsatz. Darum müssen bei jeder eventuell möglichen Freisetzung von toxischen Stoffen die Genehmigungswerte eingehalten werden. Es wird generell zwischen der Radiotoxizität und Chemotoxizität unterschieden. Hohe Chemotoxizität haben Stoffe wie Cadmium, Blei oder Quecksilber. Diese sollten nicht über den Wasserpfad in die Biosphäre gelangen und das Grundwasser verunreinigen. Die Reinhaltung des Grundwassers ist im Wasserhaushaltsgesetz WHG vorgeschrieben, wobei der Schutz des Grundwassers gegen Verschmutzung durch bestimmte gefährliche Stoffe mit der Grundwasserverordnung vom 18.03.1997 konkretisiert wurde. Im Planfeststellungsbeschluss zur Errichtung des Endlagers Konrad findet sich im Anhang 4 der atomrechtlichen Nebenbestimmungen genau zu diesem Punkt eine Aufzählung von Stoffen, die nur

---

<sup>1</sup> Nobelpreis in Chemie für die Entdeckung der Spaltung schwerer Atomkerne (1944, verliehen 1945).



bis zu einem jeweiligen Grenzwert eingelagert werden dürfen. In Abbildung 1 ist ein Ausschnitt aus diesem Inventar dargestellt.

Um die Einhaltung dieser Grenzwerte in den konditionierten Abfallgebinden zu überprüfen, ist eine geeignete Messmethode notwendig, deren Nachweisempfindlichkeit die Detektion der teils sehr niedrig festgelegten Grenzwerte ermöglicht. Die Charakterisierung der Abfallgebinde sollte nach Möglichkeit zerstörungsfrei verlaufen, um eine Gefahr der Kontamination zu vermeiden und um die schon endlagergerechten Abfälle nicht neu konditionieren zu müssen. Nach dem bisherigen Stand der Technik ist nur die Bohrkernentnahme, mit anschließender chemischer Analyse (z. B. ICP-MS<sup>2</sup>) in der Lage eine Stoffdeklaration durchzuführen. Sie ist aber zerstörend und höchst arbeitsintensiv. Die bisherigen zerstörungsfreien Prüfverfahren, wie die Gamma-Spektrometrie oder die Computertomographie ermöglichen zwar eine Bestimmung der Radiotoxizität der Abfallgebinde bzw. eine Darstellung der Dichteverteilung, aber sie geben keinen Aufschluss über die Chemotoxizität. Das einzige Verfahren, das den oben genannten Ansprüchen genüge tragen könnte, ist die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse, kurz PGNAA. Dieses Verfahren ermöglicht eine zerstörungsfreie panoramische Analyse des Abfallgebundes in einer relativ kurzen Zeit von ca. ½ h - 1 h.

Für die Analyse kleiner Proben mithilfe thermischer Neutronen hat sich die PGNAA als Standardverfahren etabliert. Es finden sich an zahlreichen Forschungsreaktoren in der Welt Experimentiereinrichtungen, die ausschließlich der Analyse mittels PGNAA dienen [Molnár2004, S. 49ff]. Verfahren für die Charakterisierung großvolumiger Proben auf Basis der PGNAA befinden sich weltweit in Entwicklung. An der TU in Delft (Niederlande) werde große dünne (15 cm) Proben mit den thermischen Neutronen des dortigen Forschungsreaktors aktiviert und die Prompt-Gamma-Spektren analysiert [Degenaar2004-1]. Die Firma Westinghouse hat in den USA ein PGNAA-Prototypsystem auf Basis eines Neutronengenerators gebaut [Gehrke1997]. Allerdings haben die Auswertungen der Test-Ergebnisse und die Erfahrungen, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit gesammelt wurden, gezeigt, dass die Kollegen in den USA systematische Fehler beim Bau der Messkammer gemacht haben. Es wurde zu viel Polyethylen verbaut, wodurch die Aktivierung des enthaltenen Wasserstoffs zu einem zu hohen Compton-Untergrund geführt hat, der die Nachweisgrenzen erheblich verschlechtert.

In der vorliegenden Arbeit sollte ein PGNAA-Prototypsystem entwickelt werden, mit dem großvolumige Proben (25 bzw. 50 l) charakterisiert werden können. Für die Aktivierung der Proben wurde ein Neutronengenerator verwendet. Im Fokus der Untersuchungen standen neben der Machbarkeit eines solchen Systems, vor allem der Erkenntnisgewinn über den Neutronen- und Photonentransport innerhalb der großvolumigen Proben. Die Herausforderung besteht darin, die Selbstabschirmung der Neutronen und Photonen in Abhängigkeit von der Probenzusammensetzung zu verstehen. In dem Kapitel über die Energie- und Effizienzkalibrierung des Spektrometers bzw. in dem Kapitel über die Bestimmung der Neutronenflüsse werden die wichtigen Systemgrößen, wie die Detektor-Effizienz und der thermische Neutronenfluss bestimmt. In diesem Zusammenhang wurden verschiedene computergestützte Berechnungen (MCNP) und Experimente durchgeführt.

---

<sup>2</sup>Massenspektrometrie mit induktiv gekoppelter Plasmaanregung (Inductively Coupled Plasma - Mass Spectrometry).

Desweiteren wurde eine Neutronenabschirmung entwickelt und gebaut, die den für die Messung der Prompt-Gamma-Spektren verwendeten Halbleiter-Detektor vor der Aktivierung durch thermische Neutronen schützt. Die Abschirmung schneller Neutronen wurde theoretisch und experimentell untersucht.

Es wurden verschiedene homogene und inhomogene Probenfässer hergestellt, um die Qualifizierung des Prototypsystems im Hinblick auf die Analyse unbekannter Proben zu demonstrieren. Die Proben wurden parallel mit anderen Messsystemen und Verfahren charakterisiert, um die Ergebnisse mit dem PGNAA-Prototypsystem zu verifizieren. In dem Kapitel über die Charakterisierung verschiedener Proben werden die Nachweisgrenzen ausgewählter Elemente in den speziell präparierten Probenfässern durch die Auswertung der Prompt-Gamma-Spektren bestimmt. Die Analyse einer unbekannten Bodenprobe von einem ehemaligen Zeche-Gelände wurde mit dem Ziel verfolgt, chemotoxische Stoffe zu identifizieren und andere unerwartete Elemente in der Probe aufzuspüren.

Im vorletzten Kapitel werden die Nachweisgrenzen ausgewählter Elemente für verschiedene Bestrahlungs- und Messbedingungen bestimmt. Es wird dabei Bezug auf die für das Endlager Konrad relevanten Elemente genommen.

Die Arbeit schließt mit einem Ausblick auf die Hochskalierung des PGNAA-Systems für die Charakterisierung realer Abfallgebinde mit einem Volumen von 200 l.

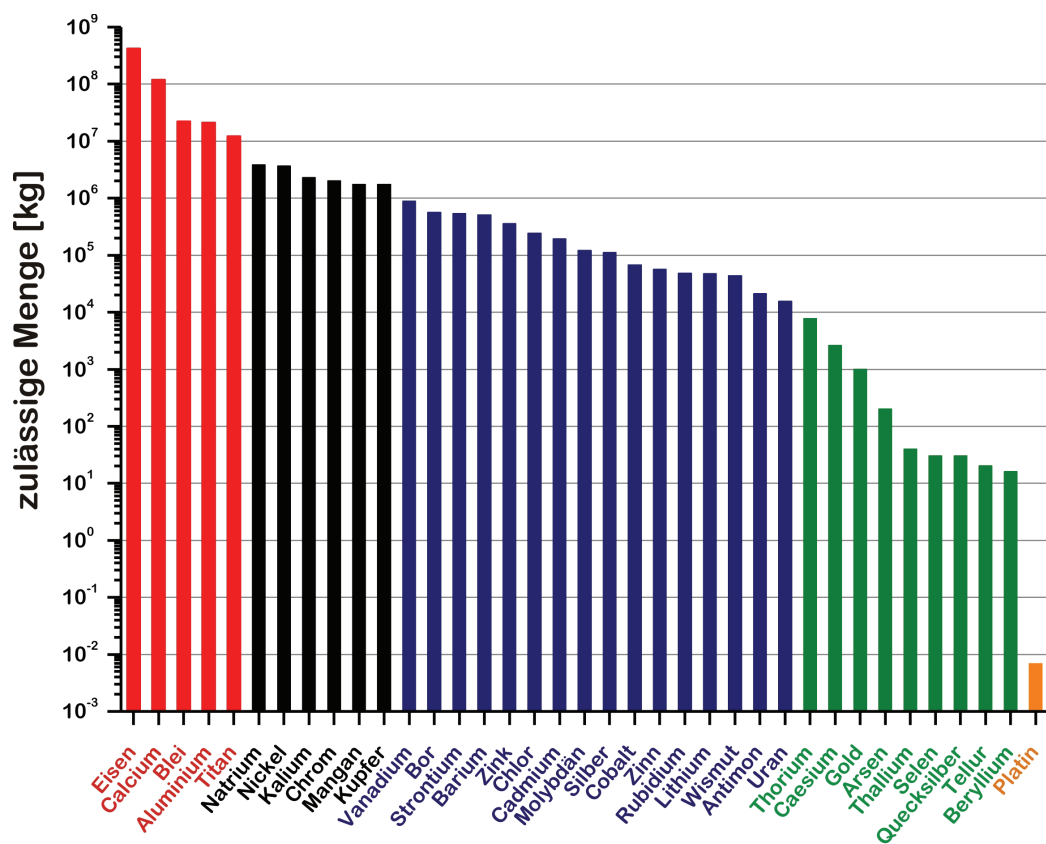


Abbildung 1: Grenzwerte für ausgewählte Elemente, die gemäß dem Planfeststellungsbeschluss [BfS2002] in Konrad endgelagert werden dürfen. Die Farbeinteilung ist willkürlich gewählt worden und soll nur die Darstellung im Bezug auf die Untercheidung der verschiedenen Größenordnungen verdeutlichen.

# Kapitel 2

## Die Neutronen-Aktivierungs-Analyse

### Zusammenfassung

Die Neutronen-Aktivierungs-Analyse (NAA) ist eine zerstörungsfreie Methode zur quantitativen chemischen Analyse basierend auf der Kernaktivierung von Elementen in den zu analysierenden Proben. Sie gehört im Bereich der chemischen Analyse zu den nachweisempfindlichsten zerstörungsfreien Methoden. In diesem Kapitel werden neben der historischen Entwicklung dieser Methode auch deren verschiedene Varianten kurz dargestellt. Die Herausforderung in der Weiterentwicklung der NAA liegt in der Untersuchung großvolumiger Proben. Letztendlich ist deren Charakterisierung nur durch die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (PGNAA) unter Verwendung hochenergetischer Neutronen möglich.

## 2.1. Historische Entwicklung der Neutronen-Aktivierungs-Analyse

Nachdem im Jahre 1932 James Chadwick<sup>3</sup> die ersten experimentellen Nachweise für Neutronen erbracht hatte, haben Frédéric Joliot-Curie und seine Frau Irène Joliot-Curie<sup>4</sup> in den folgenden Jahren die ersten Versuche zur Aktivierung von Atom-Kernen mit Neutronen unternommen [Jericha2005]. Es folgten viele bahnbrechende Entdeckungen im Bereich der Kernphysik. Schon im Jahre 1936 entwickelte György Hevesy<sup>5</sup>, welcher als Begründer der Radiochemie gilt, zusammen mit Hilde Levi in Kopenhagen die Methode der Neutronen-Aktivierungs-Analyse, um seltene Elemente zu untersuchen. Mit dem technologischen Fortschritt und der Verfügbarkeit starker Neutronenquellen, wie den Forschungsreaktoren (z. B. Oak Ridge X-10 mit einem Fluss von  $10^{12}$  n·cm<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup> im Jahre 1945), entwickelten sich immer neuere Anwendungsgebiete [Guinn1980]. Damit ging eine stetige Verbesserung der Messelektronik und der Detektorsysteme einher. Anfangs wurden Natriumiodid (NaI) Szintillationszähler verwendet, um die Gamma-Strahlung infolge der Neutronen-Aktivierung nachzuweisen. Der große Durchbruch erfolgte mit der Einführung auf Germanium basierender Halbleiter-Detektoren in den 60er Jahren. Diese Detektoren liefern eine um mehr als zwanzigfach bessere Auflösung als die NaI Szintillationszähler, allerdings mit dem Nachteil einer geringeren Nachweisempfindlichkeit. Zusätzliche Entwicklungen, wie schnelle ADCs und Verstärker ermöglichten es Systeme zu bauen, die für die Messung sehr kurzlebiger Isotope bzw. „in beam“-Messungen mit hohen Zählraten (PGNAA) geeignete sind. Am *Massachusetts Institute of Technologie* (MIT) wurden Ende der 60er und Anfang der 70er Jahre erste systematische Reihen von Messungen prompter Gamma-Spektren für 75 Elemente durchgeführt. Die Überarbeitung der gewonnenen Daten führte zu der „*Chalk River – Compilation*“, einer Datenbank für die Prompt-Gamma-Strahlung als Folge des Neutroneneinfangs. Dieses Tabellenwerk war für 20 Jahre die einzige Quelle für Spektroskopiedaten auf dem Gebiet der PGNAA. Erst im Jahre 2004 wurde eine neue Datenbank mit aktualisierten Wirkungsquerschnitten, für die der PGNAA zugrundeliegenden (n, γ)-Reaktion, von der IAEA in Umlauf gebracht [IAEA2004].

## 2.2. Einführung in die NAA-Methoden

Die Neutronen-Aktivierungs-Analyse ist eine kernphysikalische Methode zur qualitativen und quantitativen Analyse der Element- bzw. Isotopenzusammensetzung von Proben. Diese werden dazu mit Neutronen bestrahlt, wobei deren Atomkerne in Wechselwirkung mit den Neutronen treten und in Abhängigkeit von der Art der Kernreaktion verschiedene Aktivierungsprodukte entstehen können. Einige der stabilen Nuklide werden in Radionuklide umgewandelt, die Probe wird aktiviert. Diese Form der Aktivierung<sup>6</sup> kann mithilfe von Neutronen verschiedenster Quellen erreicht werden. Sowohl während der Aktivierung als auch beim Zerfall wird Gamma-Strahlung mit charakteristischen Energien, die zur Analyse genutzt werden kann, emittiert. Das Prinzip der NAA beruht auf der Kernreaktion  ${}^A_Z(n, \gamma){}^{A+1}_Z$ . Das stabile Isotop  ${}^A_Z$ , das eine Isotopenhäufigkeit  $h$ , einen thermischen

<sup>3</sup> Nobelpreis in Physik für die Entdeckung des Neutrons (1935).

<sup>4</sup> Nobelpreis in Chemie für die gemeinsam durchgeführten Synthesen von neuen radioaktiven Elementen (1935).

<sup>5</sup> Nobelpreis in Chemie für seine Arbeiten über die Anwendung der Isotope als Indikatoren bei der Erforschung chemischer Prozesse (1943, verliehen 1944).

<sup>6</sup> Die Kernanregung bzw. Aktivierung kann auch mit Protonen und hochenergetischen Photonen erreicht werden [Alfassi1994, S. 94].

( $\sigma_{th}$ ) und epithermischen ( $\sigma_{epi}$ ) Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang besitzt, wird mit einem thermischen ( $\phi_{th}$ ) und epithermischen ( $\phi_{epi}$ ) Neutronenfluss während einer Bestrahlungsdauer  $t_b$  bestrahlt [Mauerhofer95]. Das entstehende Produkt  $^{A+1}Z$  zerfällt mit einer Halbwertszeit  $t_{1/2}$ . Daraus ergibt sich die Aktivitätsgleichung für die Anzahl  $N$  der zu bestimmenden Atome  $^AZ$ :

$$A = N \cdot h \cdot \left( \sigma_{th} \cdot \phi_{th} + \sigma_{epi} \cdot \phi_{epi} \right) \cdot \left( 1 - \exp \left( -\ln 2 \cdot \frac{t_b}{t_{1/2}} \right) \right) \quad (2.1)$$

Bei der instrumentellen Neutronen-Aktivierungs-Analyse (INAA) wird die Probe zum Teil mehrmals bestrahlt, wobei zwischendurch die Aktivität der Radionuklide gemessen wird. Vom Bestrahlungsort im Reaktor wird die Probe mittels Rohrpost in eine separate Messkammer transportiert, wo das Gamma-Spektrum der Probe mit hochauflösenden Spektrometern gemessen wird. Die Untergrundstrahlung ist in den Messkammern entsprechend gering. Um die Selektivität einzelner Elemente, die einen hohen Wirkungsquerschnitt für epithermische Neutronen besitzen, zu erhöhen, kann die Probe mit Cadmiumblech umhüllt werden. Diese Variation nennt sich Epithermische-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (ENAA), weil die thermischen Neutronen vom Cadmiumblech absorbiert werden und so zu keiner Aktivierung der Probe führen können. Eine andere Variante befasst sich mit der Tatsache, dass die produzierten Radionuklide unterschiedliche Halbwertszeiten haben können. Diese Halbwertszeiten können sowohl Bruchteile einer Sekunde betragen, als auch mehrere Minuten lang sein. Radionuklide mit kurzen Halbwertszeiten können schwerer im Umfeld der langlebigen Radionuklide nachgewiesen werden. Erst durch eine radiochemische Aufarbeitung der Proben nach Bestrahlungsende können die Radionuklide voneinander getrennt werden [Alfassi1994, S. 144]. Dieses Verfahren wird als Radiochemische-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (RNAA) bezeichnet. Durch die radiochemische Abtrennung von Radionukliden, die im Gamma-Spektrum für einen hohen Compton-Untergrund sorgen, kann die Nachweisempfindlichkeit für andere Radionuklide, mit sehr viel schwächeren Aktivitäten, erheblich verbessert werden.

Eine weitere Variante der NAA ist die Verzögerte-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (DNAA, engl. delayed). Mit diesem Verfahren ist es möglich spaltbare Elemente, insbesondere Uran, Plutonium und Thorium nachzuweisen. Die Proben werden mit Neutronen bestrahlt, für Thorium sind schnelle Neutronen notwendig. Neben den Spaltprodukten entstehen verzögerte Neutronen, die durch eine Anordnung von Neutronenzählrohren (mit  $^3\text{He}$  oder  $\text{BF}_3$  Füllung) in einem Paraffinmoderator gemessen werden können.

Eine andere Weiterentwicklung der NAA stellt die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse dar. Bei der PGNAA wird die Gamma-Strahlung, die schon während des Aktivierungsprozesses erzeugt wird, gemessen. Es handelt es sich bei der PGNAA, genauso wie bei der NAA auch, um eine zerstörungsfreie<sup>7</sup> Charakterisierung verschiedenartiger Proben, wobei die zu untersuchende Proben nicht vorbehandelt werden müssen. Allerdings besitzt das Verfahren gegenüber den vorher genannten Methoden den entscheidenden Vorteil, dass praktisch jedes Element bzw. sogar jedes Nuklid, mit der Ausnahme von  $^4\text{He}$ , nachgewiesen werden kann. Die PGNAA ist ebenso wie die NAA eine Multielementanalyse.

---

<sup>7</sup> Jedoch nicht im nuklearchemischen Sinne, da durch die Kernreaktionen Radionuklid-Konzentrationen verändert werden.

Die PGNAA ist heutzutage im Bereich der Spurenanalytik ein sehr etabliertes Analyseverfahren. Für die Untersuchung von Proben der Größenordnung Gramm bzw. Milliliter finden sich an Forschungsreaktoren auf der ganzen Welt spezielle Messeinrichtungen, die nur der Analyse mittels PGNAA dienen. Darüber hinaus wird diese Methode für spezielle Anwendungen<sup>8</sup> in der Geologie, der Geochemie, der Archäologie, der Sprengstoffkontrolle, der Lebensmittelkontrolle, der Qualitätskontrolle in der Zement- und Kohle-Industrie genutzt [Molnár2004, S. 141ff; Bastian2004].

Für die Charakterisierung kleiner Proben sind die Neutronen-Aktivierungs-Analyse-Verfahren in all ihren Varianten gut verstanden und werden in vielen Anwendungsbereich eingesetzt. Jedoch sind die NAA-Verfahren für die Charakterisierung großvolumiger Proben noch in der Entwicklungsphase. Weltweit sind nur 4 Standorte (Tokyo, Delft, Cadarache, Jülich) [Sueki1996; Blaauw2007; Loche2006] bekannt, die aktuell auf diesem Gebiet forschen.

### 2.3. Neutronen-Klassifizierung

Für die nachfolgenden Beschreibungen ist es notwendig eine Klassifizierung der Neutronen entsprechend ihrer Energie vorzunehmen (siehe Abbildung 2) [Byrne1994]:

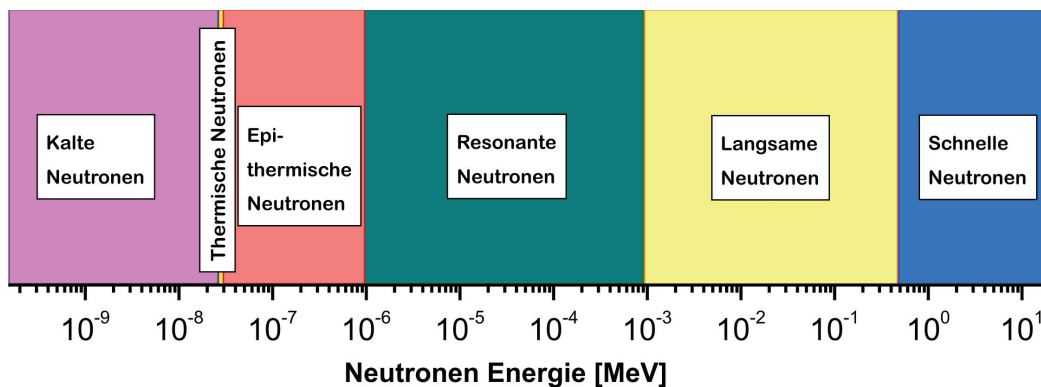


Abbildung 2: Klassifizierung der Neutronen nach ihrer Energie.

- Schnelle Neutronen:  $E_n \geq 0,5 \text{ MeV}$  (Bei Neutronen über 20 MeV wird eine relativistische Betrachtung notwendig.)
- Langsame Neutronen:  $E_n \leq 0,5 \text{ MeV}$
- Resonante Neutronen:  $E_n = 1 \text{ eV} - 1 \text{ keV}$
- Epithermische Neutronen:  $E_n = 0,025 - 1 \text{ eV}$
- Thermische Neutronen (293 K bzw. 20 °C):  $E_n = 0,025 \text{ eV}$ <sup>9</sup>
- Kalte Neutronen  $E_n < 0,025 \text{ eV}$

<sup>8</sup> An dieser Stelle muss erwähnt werden, dass die genannten Anwendungen eine gezielte Suche nach bestimmten Elementen darstellen und sich dadurch von den Analyse-Möglichkeiten des Systems in dieser Arbeit unterscheiden.

<sup>9</sup> Diese Energie entspricht einer Teilchengeschwindigkeit von  $2200 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

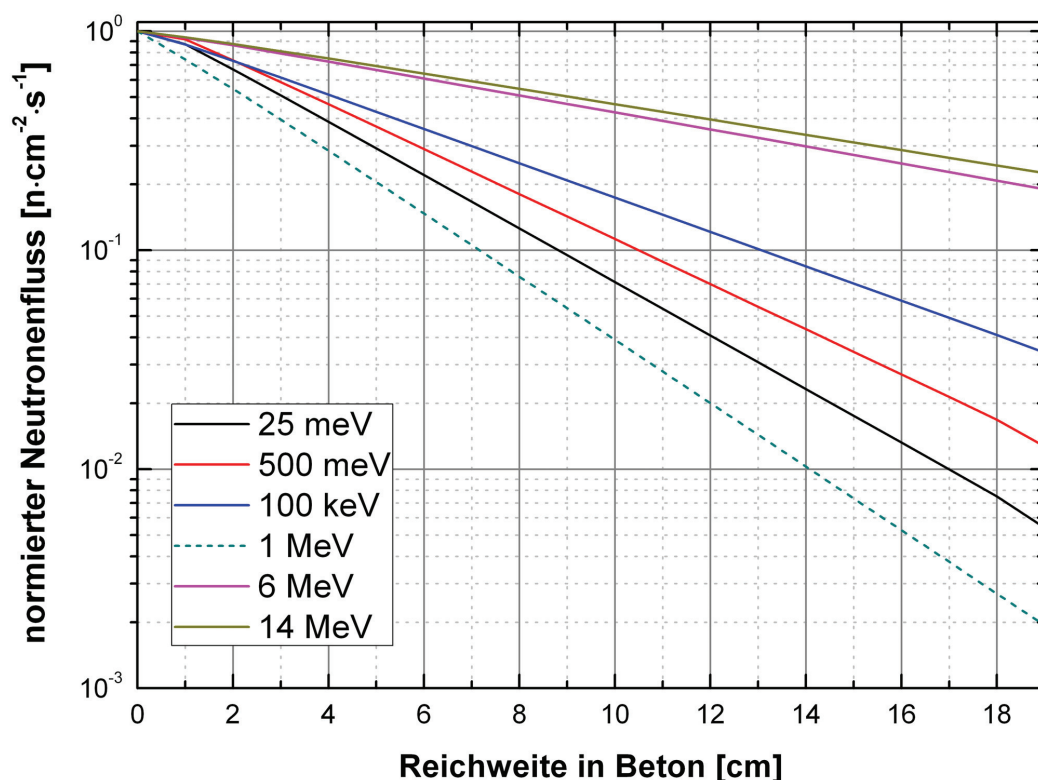
Kleine Proben, der Größenordnung [mg] bzw. [ml] werden in der Regel mit thermischen oder kalten Neutronen untersucht. Als Neutronenquelle dient ein Forschungsreaktor, der zusammen mit einem ausgefeilten Messinstrumentarium für einen hohen homogenen Neutronenfluss im Bereich der Probe sorgt. Beispielhaft hierfür ist die Einrichtung am Institut für Isotopenforschung in Budapest (Ungarn) zu nennen. Die dortige PGNAA-Anlage zeichnet sich durch einen hohen thermischen Neutronenfluss von  $5 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  und ein Detektorsystem mit Anti-Compton-Spektrometer aus. Dadurch werden sehr niedrige Nachweisgrenzen erreicht [Molnár2004, S. 25], die im Vergleich zu der Nachweisempfindlichkeit bisheriger PGNAA-Systeme, zur Charakterisierung großer Proben, um mehr als eine Größenordnung kleiner sind.

Für die Analyse großer Proben, in der Größenordnung mehrerer Kilogramm ergeben sich Schwierigkeiten, die vor allem mit dem geringen Eindringvermögen der thermischen Neutronen zusammenhängen [Keisuke1996]. Ein Reaktor als Neutronenquelle für die Charakterisierung großer Proben wird von einigen Forschergruppen untersucht, aber grundlegende Probleme lassen sich dadurch nicht lösen. So wurde an der Technischen Universität in Delft (Niederlande) die PGNAA an dem dortigen Forschungsreaktor weiterentwickelt [Blaauw2007]. Für die Charakterisierung wurden Beton-Proben der Länge 1 m und dem Durchmesser von 15 cm mit thermischen Neutronen bestrahlt, dabei wurde der Probenkörper segmentweise untersucht. Diese Proben hatten eine homogene Dichteverteilung von  $2 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$  und eine Gesamtmasse von 35 kg. Für die Beton-Proben konnte gezeigt werden, dass eine zerstörungsfreie Charakterisierung ohne a priori Wissen möglich ist [Degenaar2004-2; Tzika2004; Lindstrom2008].

Die große Herausforderung bei der Untersuchung großvolumiger Proben stellen die Selbstabsorption der Neutronen und Photonen dar. Sie hängen sehr stark von der Materialzusammensetzung und der Dichte der Probe ab [Blaauw2005]. Die Selbstabsorption, sowohl der Neutronen, als auch Photonen nimmt mit zunehmender Probengröße zu. Die Wissenschaftler an der TU Delft haben daher versucht dieses Problem mit länglichen, dünnen Proben zu umgehen. Für die PGNAA mit thermischen Neutronen ist das auch zwingend notwendig, da die thermischen Neutronen nur ein geringes Eindringvermögen in die Probe haben. Für die Charakterisierung großer Proben, mit Durchmessern von über 20 cm, sind daher schnelle Neutronen mit einer Energie von über 1 MeV notwendig.

Die Reichweite der Neutronen hängt von ihrer Energie und der Zusammensetzung der Probe ab. In Abbildung 3 sind die Eindringtiefen für Neutronen mit unterschiedlichen Energien in Beton dargestellt. Dieses Beispiel zeigt, dass zwar Neutronen mit höherer Energie eine größere Wahrscheinlichkeit haben tief in den Probenkörper einzudringen, aber es aufgrund von Resonanzen der Neutronen mit dem Probenmaterial zu starken Absorptionserscheinungen kommen kann.





**Abbildung 3:** Ergebnisse einer MCNP-Studie zur Bestimmung der Eindringtiefe von Neutronen mit unterschiedlichen Energien in Beton ( $1,6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ). Im Bereich um 1 MeV weist der totale Wirkungsquerschnitt von Beton eine Resonanz auf. Daher ist die Reichweite für Neutronen mit dieser Energie wesentlich geringer (gestrichelte Linie).

Die PGNA mit thermischen Neutronen für die Charakterisierung inhomogener Proben hat zudem den Nachteil, dass Neutronenabsorber in der Probe, wie z. B. Cadmium, zu einer sehr starken Reduzierung des Neutronenflusses führen. Schnelle Neutronen sind für die Charakterisierung großvolumiger Proben daher besser geeignet, weil sie sowohl tief in den Probenkörper eindringen können, als auch von (thermischen) Neutronenabsorbern kaum aufgehalten werden.

Für die Nutzung schneller Neutronen kommen derzeitige Forschungsreaktoren nicht infrage, da er im Wesentlichen thermische Neutronen liefert. Um freie Neutronen mit hoher Energie zu erzeugen, bedarf es zurzeit alternativer Quellen, wie z. B. Neutronengeneratoren oder neutronenemittierende Radionuklide.

# Kapitel 3

## Neutronenreaktionen und Neutronenquellen

### **Zusammenfassung**

Die Wechselwirkungen von Neutronen mit Materie sind vielfältig. Um die PGNAA und die dabei ablaufenden Prozesse besser verstehen zu können, werden in diesem Kapitel die wesentlichen physikalischen Reaktionen im Einzelnen kurz erklärt. Desweiteren werden die Eigenschaften und Besonderheiten der verschiedenen Neutronenquellen vorgestellt und im Fall des Neutronengenerators detaillierter beschrieben.

### 3.1. Wechselwirkungen von Neutronen mit Materie

Die Art, wie die Neutronen mit dem Probenmaterial wechselwirken, wird im Wesentlichen durch die verschiedenen Isotope der Elemente bestimmt. Ein Element hat in der Regel 1 bis 10 stabile Isotope. Je nach Energie der Neutronen dominieren wenige physikalische Prozesse die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit mit den Isotopen bzw. ihren Kernen. Jeder Kern eines Isotops hat ein charakteristisches Streu- und Absorptionsverhalten<sup>10</sup>, dass durch mikroskopische Wirkungsquerschnitte  $\sigma_s$  und  $\sigma_a$  beschrieben wird. Diese werden in barn [b] angegeben, wobei 1 barn =  $10^{-28}$  m<sup>2</sup> entspricht. Dabei ist zu beachten, dass die Wechselwirkung umso wahrscheinlicher ist, je größer die Wirkungsquerschnitte sind. Für die Betrachtung einer Probe, die aus vielen Isotopen aufgebaut ist, werden makroskopische Wirkungsquerschnitte<sup>11</sup>  $\Sigma_s$  und  $\Sigma_a$  [m<sup>-1</sup>] benutzt. Die Summe aus dem Streu- und Absorptionswirkungsquerschnitt ergibt den totalen makroskopischen Wirkungsquerschnitt:

$$\Sigma_s = \sum_i (\sigma_{s,i} \rho_i) \quad (3.1)$$

$$\Sigma_a = \sum_i (\sigma_{a,i} \rho_i) \quad (3.2)$$

$$\Sigma_t = \Sigma_s + \Sigma_a \quad (3.3)$$

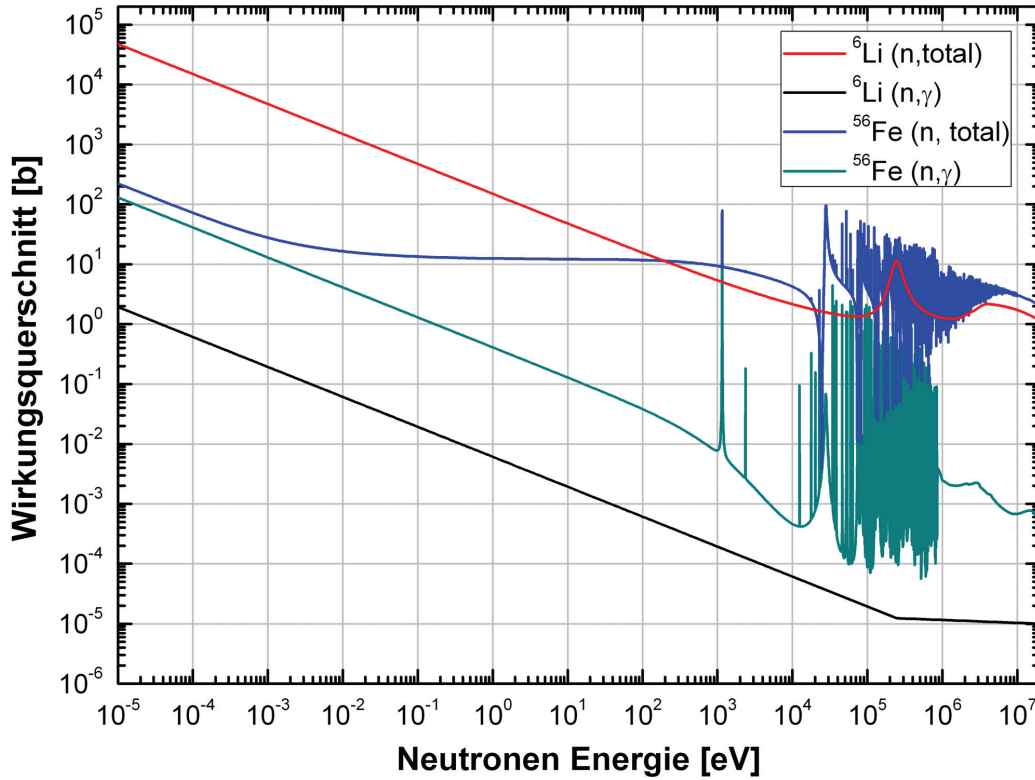
Hierbei ist  $\rho_i$  [m<sup>-3</sup>] die Isotopendichte. Für einen Mix aus verschiedenen Isotopen können die jeweiligen Wirkungsquerschnitte aufaddiert werden. In Abbildung 4 sind beispielhaft die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte von <sup>6</sup>Li und <sup>56</sup>Fe dargestellt. Es ist in der doppelt logarithmischen Darstellung zu erkennen, wie die Wirkungsquerschnitte linear mit zunehmender Neutronenenergie abnehmen. Dieses Verhalten wird durch das sogenannte „1/v Gesetz“ beschrieben [Steyerl1977]. Es besagt unter anderem, dass die Wahrscheinlichkeit für den Einfang eines Neutrons proportional zu der Zeit ist, die es in der Nähe des Kerns verweilt:

$$\sigma_a \propto \frac{1}{v} \propto \frac{1}{\sqrt{E}} \propto \frac{1}{\sqrt{T}} \quad (3.4)$$

Hierbei ist  $v$  die Geschwindigkeit der Neutronen,  $E$  ihre Energie und  $T$  die entsprechende Temperatur ( $E = k_B \cdot T$ ).

<sup>10</sup> Die Absorption schließt sowohl den Neutroneneinfang  $\sigma_c$  als auch die Neutronenspaltung  $\sigma_f$  mit ein.

<sup>11</sup> Die Bezeichnung „Wirkungsquerschnitt“ ist unglücklich gewählt, da  $\Sigma$  die Dimension [m<sup>-1</sup>] und der Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  die Dimension [m<sup>2</sup>] hat. Der makroskopische Wirkungsquerschnitt kann eher als eine Wahrscheinlichkeit für das Eintreten einer bestimmten Wechselwirkung aufgefasst werden.



**Abbildung 4:** Für die beiden Isotope  ${}^6\text{Li}$  und  ${}^{56}\text{Fe}$  ist sowohl der Verlauf des totalen mikroskopischen Wirkungsquerschnittes  $\sigma_i(n, \text{total})$  als auch der für den Neutroneneinfang  $\sigma_\gamma(n, \gamma)$  sehr unterschiedlich.  ${}^6\text{Li}$  hat nur eine Resonanz bei 250 keV, wohingegen  ${}^{56}\text{Fe}$  sehr viele Resonanzen bei unterschiedlichen Energien aufweisen kann. Im Falle einer Resonanz entspricht die kinetische Energie eines Neutrons  $E_{\text{kin}}$  zusammen mit der Bindungsenergie des Kerns  $E_B$  einem angeregten Kernniveau:  $E^* = E_{\text{kin}} + E_B$ . Die Daten wurden der JEFF-3.1 Datenbank ( $MT = 1$ ) entnommen.

Eine weitere wichtige Größe ist die „freie Weglänge“  $\lambda$  [m] für einen Treffer des Neutrons mit einem Atomkern (Streuung, Absorption). Für diese Größe gilt die Beziehung [Wirtz1958, S. 2ff]:

$$\lambda = \frac{1}{\Sigma_t} = \frac{1}{\rho \sigma_t} \quad (3.5)$$

wobei  $\sigma_t$  der totale mikroskopische Wirkungsquerschnitt und  $\rho$  die Dichte des durchstrahlten Materials sind. Im Gegensatz zur spontanen Kernumwandlung beim radioaktiven Zerfall handelt es sich bei der Kernreaktion um eine induzierte Kernumwandlung. Die Energetik der Kernreaktion verläuft analog zu chemischen Reaktionen:



$A$  ist der Atomkern oder das „Target“,  $x$  das Neutron bzw. Projektil. Das Zwischenprodukt ist ein angeregter Atomkern  $C^*$ , auch Compoundkern genannt. Die Produkte sind der Atomkern  $B$  und ein

hochenergetisches prompt emittiertes Photon  $\gamma$ . Bei der Reaktion wird die Energie  $Q$  freigesetzt, die sich aus der Massendifferenz der Reaktionspartner ergibt:  $(M_A + M_x - M_b - M_y) \cdot c^2$ .

Die Reaktionsrate  $dP_B/dt$  wird durch den totalen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_t$ , den Neutronenfluss  $\phi$  und die Atomanzahl  $N$  bestimmt:

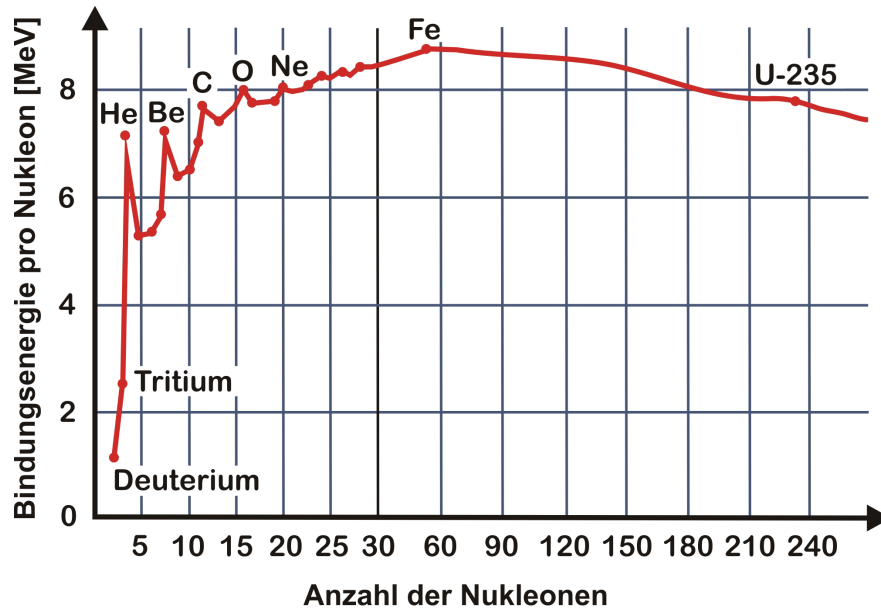
$$\frac{dP_B}{dt} = \sigma_t \cdot \phi \cdot N \quad (3.7)$$

Für den Fall der NAA müsste noch der radioaktive Zerfall des Atomkerns nach der Reaktion  $\lambda_t \cdot N_B$ , mit der Zerfallskonstante  $\lambda_t$ , berücksichtigt werden. Im Falle der PGNAA spielt der radioaktive Zerfall keine Rolle und wird nicht berücksichtigt, Gleichung 3.7 entspricht direkt der Aktivitätsgleichung:

$$A_B(t) = \sigma_t \cdot \phi \cdot N \quad (3.8)$$

### 3.1.1. Neutroneneinfang mit simultaner Photonenemission

Für die PGNAA ist der Neutroneneinfang ( $n, \gamma$ ) die wichtigste Reaktion von Neutronen mit Materie. Durch den Einfang eines Neutrons geht der Atomkern in einen angeregten Energiezustand über und bildet einen sogenannten Compoundkern. Dessen Energie entspricht der Bindungsenergie plus der kinetischen Energie des eingefangenen Neutron. Wenn die Neutronenenergie im thermischen Bereich liegt (meV), entspricht der Energiewert für die Einfangsreaktion der Neutronenbindungsenergie. Die Bindungsenergie pro Nukleus liegt für über 80 % der stabilen Kerne im Bereich zwischen 6 und 9 MeV (siehe Abbildung 5) [Mayer-Kuckuk1994].



**Abbildung 5:** Bindungsenergie pro Nukleon als Funktion der Anzahl der Nukleonen eines Kerns. Die Bindungsenergie lässt sich halbempirisch nach der Bethe-Weizsäcker-Formel berechnen.

Der Zerfall des Compoundkerns findet innerhalb von  $10^{-16}$  Sekunden statt. Durch die Emission von 2 - 4 Gammas in Kaskade erreicht der neue Kern in  $10^{-9}$  -  $10^{-12}$  Sekunden seinen Grundzustand, die emittierten Gammas werden als „Prompt-Gammas“ bezeichnet. Der angeregte Atomkern kann einige Hundert Prompt-Gammas mit verschiedenen Energien emittieren. Nur die leichtesten Nuklide, unterhalb von Fluor, haben vereinfachte Gammaspektren mit wenigen Prompt-Gammas. Die IAEA hat eine Datenbank mit nahezu allen Elementen und ihren natürlichen Isotopen veröffentlicht, in der neben den Prompt-Gammas auch die Wirkungsquerschnitte für den thermischen Neutroneneinfang zu finden sind [IAEA2007].

### 3.1.2. Thermalisierung

Die Moderation eines Neutrons an einem Atomkern führt zu einem Energieübertrag und einer Richtungsänderung des Neutrons. Der Energieübertrag von dem Neutron auf den Atomkern ist umso größer je leichter der Kern ist, weil dann die Stoßpartner in etwa die gleiche Masse haben. Daher werden Stoffe, wie Polyethylen (PE), mit leichten Atomkernen für die Moderation der Neutronen eingesetzt. Spaltneutronen benötigen 20 - 25 Stöße mit Wasserstoffkernen, bis sie thermalisiert sind [Molnár2004, S. 7; Wirtz1958, S. 66]. Der Energieübertrag hängt dabei von der relativen Atommasse  $A$  und der kinetischen Energie  $E_i$  der Neutronen ab. Nach dem Stoß hat das Neutron den Energiewert:

$$E_2 = E_1 \cdot \alpha, \text{ mit } \alpha = \left( \frac{A-1}{A+1} \right)^2 \quad (3.9)$$

Nach den Gesetzen der Quantenmechanik (Welle-Teilchen-Dualismus) werden bei sehr niedrigen Energien, wenn die „Neutronenwellenlänge“ dem Abstand der Atomkerne entspricht (de Broglie Wellenlänge), typische Wellenphänomene beobachtet. Bei kristallinen Materialien werden die Neutronen, ähnlich wie die Photonen bei der Röntgenbeugung, unter einem Braggwinkel gestreut. Dieses Phänomen wird für den Transport niederenergetische Neutronen vom Reaktor zum Experimentier-Target genutzt, da Neutronen mit einer größeren Wellenlänge als der „Bragg-Cut-Off“-Wellenlänge gestreut werden und das Material, den Neutronenleiter, mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit nicht verlassen.

### 3.1.3. Nukleare Reaktionen mit schnellen Neutronen

Die inelastische Streuung ( $n, n'$ ) von Neutronen kann nur über der Energieschwelle des ersten angeregten Zustandes des Kerns, an dem gestreut wird, stattfinden. Diese Eigenschaft kann genutzt werden, um gezielt Reaktionen mit schnellen Neutronen zu beobachten. Allerdings kann es Interferenzen mit Prompt-Gammas aus Neutroneneinfangsreaktionen mit anderen Elementen geben. Die Reaktionen mit schnellen Neutronen wurden zusammen mit ihren Wirkungsquerschnitten für eine große Anzahl an Isotopen von der IAEA in einem Katalog veröffentlicht [IAEA1998].

Die Reaktionen mit schnellen Neutronen können zur Freisetzung von Sekundärteilchen führen. Beispielhaft hierfür sind die ( $n, p$ )-, die ( $n, \alpha$ )- und die ( $n, 2n$ )-Reaktionen, wobei neben der Gamma-Strahlung Protonen,  $\alpha$ -Teilchen und weitere Neutronen freigesetzt werden. Diese Reaktionen sind endotherm und finden erst ab einer für das Probenmaterial charakteristischen Schwellenenergie statt. Im Rahmen dieser Arbeit sind die folgenden Reaktionen relevant:  $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$  ( $E_\gamma = 1779 \text{ keV}$ ),

$^{12}\text{C}(\text{n}, \text{n}')^{12}\text{C}$  ( $E_\gamma = 4439 \text{ keV}$ ),  $^{76}\text{Ge}(\text{n}, 2\text{n})^{75\text{m}}\text{Ge}$  ( $E_\gamma = 198 \text{ keV}$ ) und  $^{208}\text{Pb}(\text{n}, 2\text{n})^{207\text{m}}\text{Pb}$  ( $E_\gamma = 570 \text{ keV}$ ).

### 3.1.4. Neutronen Absorption und Streuung in der Probe (Selbstabschirmung)

Für die Aktivierung spielt sowohl die Größe des thermischen Neutronenflusses, als auch die Probenmasse eine Rolle. Anhand der Aktivierungsgleichung 2.1 ist zu erkennen, dass beide Größen in einem linearen Zusammenhang mit der Aktivität stehen. Der relativ geringe thermische Neutronenfluss, der durch die Thermalisierung der schnellen Neutronen entsteht, kann weitgehend durch eine große Probenmasse kompensiert werden. Allerdings wird die Nachweisempfindlichkeit durch die Abschirmung der Neutronen und Photonen in den großvolumigen Proben negativ beeinflusst. Der Effekt der Selbstabschirmung der Neutronen ist darauf zurückzuführen, dass die Wirkungsquerschnitte der Elemente zum Teil stark variieren. Der Neutroneneinfangwirkungsquerschnitt für thermische Neutronen variiert beispielsweise um acht Größenordnungen (von Sauerstoff:  $1,9 \cdot 10^{-4} \text{ b}$  bis Gadolinium:  $48,8 \cdot 10^4 \text{ b}$ ) [Molnár2004, S. 22]. Enthält die zu untersuchende Probe einen relativ hohen Anteil an stark absorbierenden Elementen, wird das Neutronenfeld innerhalb der Probe dementsprechend stark abgebaut. Dieser Effekt tritt besonders dann auf, wenn der Neutronenabsorber inhomogen in der großvolumigen Probe verteilt ist [Lindstrom2008]. Dadurch wird der Neutronenfluss lokal relativ stark herabgesetzt. Der Selbstabschirmungsfaktor  $f$  für einen kollimierten thermischen Neutronenfluss ist das Verhältnis des mittleren Flusses  $\langle\phi\rangle$  in der Probe und dem Fluss  $\phi_0$ , der auf die Probe trifft:

$$f = \langle\phi\rangle / \phi_0 \quad (3.10)$$

Die Größenordnung dieses Faktors wird durch den Radius  $r$  der Probe und dem totalen makroskopischen Wirkungsquerschnitt  $\Sigma_t$  bestimmt. Für den Fall eines Zylinderfasses hat der Selbstabschirmungsfaktor die Form [Tzika2004]:

$$f = \frac{1}{r \cdot \Sigma_t} \cdot [I_1(2 \cdot r \cdot \Sigma_t) - L_1(2 \cdot r \cdot \Sigma_t)] \quad (3.11)$$

Hierbei sind  $I_1(x)$  bzw.  $L_1(x)$  modifizierte Bessel- bzw. Struve-Funktionen, also Lösungen nicht homogener Bessel-Differentialgleichungen.

Die PGNAA großvolumiger Proben wird zudem durch die Streuung der Neutronen beeinflusst. Insbesondere Wasserstoff mit seinem hohen Wirkungsquerschnitt für inkohärente Streuung ist ein Problem. Für thermische Neutronen und gebundenen Wasserstoff liegt der Wert bei 80 b und für freie Atome bei 20,5 b. Bei der Analyse wasserstoffhaltiger Proben, wie z. B. Polyethylen, muss dieser Effekt besonders berücksichtigt werden. Es wurde eine MCNP-Studie durchgeführt, die einen linearen Zusammenhang zwischen der Gamma-Impulsrate und der Wasserstoffkonzentration in betonierten Proben zeigt. Die Ergebnisse dieser Berechnungen werden in Abschnitt 11.5 diskutiert.

Der Einsatz von schnellen Neutronen für die Charakterisierung großvolumiger Proben hat zudem den Vorteil, dass die überthermischen Neutronen, die nicht durch die Absorber der thermischer Neutronen weggefangen werden, Neutroneneinfangreaktionen mit den Kernen der Proben-Elemente machen und so zu einer Erhöhung der Nachweisempfindlichkeit beitragen.

### 3.2. Zeitaufgelöste Neutronenphysik

Mit gepulsten Quellen hochenergetischer Neutronen ist es möglich die verschiedenen physikalischen Kernreaktionen zu beobachten. Der Neutronenpuls wird durch die Absorptions- und Moderationseigenschaften der Probe beeinflusst. In diesem Zusammenhang ist sowohl die Zeit  $T_s$ , die zur Moderation der schnellen Neutronen notwendig ist, als auch die Lebensdauer der thermischen Neutronen  $T_L$  interessant. Die Abbremsung der schnellen Neutronen geschieht durch elastische und inelastische Stöße. Bei Energien unterhalb 1 MeV finden in der Regel nur noch elastische Stöße statt. Um der Frage nachzugehen, wie groß der mittlere Energieverlust eines Neutrons ist, wird üblicherweise das mittlere logarithmische Energiedekrement (*lethargy*) betrachtet [Wirtz1958, S. 65ff]:

$$\xi = \ln \frac{E_2}{E_1} = 1 + \frac{\alpha}{1-\alpha} \ln \alpha \quad (3.12)$$

Die Größe  $\xi$  gibt an, um welchen Betrag das Neutron bei einem Stoß auf der logarithmischen Energieskala im Mittel vorrückt. Je größer  $\xi$  ist, umso besser bremst die Streusubstanz. Mit dieser Größe kann die mittlere Anzahl an Stößen  $\chi$ , die zur Abbremsung der Neutronen von der Energie  $E_0$  auf die Energie  $E$  notwendig ist, berechnet werden:

$$\chi = \frac{1}{\xi} \cdot \ln \frac{E_0}{E} \quad (3.13)$$

Das Produkt aus  $\xi$  und dem makroskopischen Streuquerschnitt  $\Sigma_s$  wird für gewöhnlich als das Bremsvermögen (*slowing down power*) [ $\text{cm}^{-1}$ ] bezeichnet. Dieses geht in die Berechnung für die Moderationszeit  $T_s$  mit ein:

$$T_s = \frac{2}{\xi \cdot \Sigma_s} \left( \frac{1}{v_{th}} - \frac{1}{v_0} \right) \quad \text{mit der Geschwindigkeit } v = \sqrt{\frac{2 \cdot E_{kin}}{m}} \quad (3.14)$$

Für die Berechnung der Moderationszeit einer Matrix aus verschiedenen Elementen ändert sich  $\xi$  zu:

$$\xi_{\text{Probe}} = \frac{\sum \rho_i \cdot \xi_i \cdot \sigma_{th,el,i}}{\sum \rho_i \cdot \sigma_{th,el,i}} \quad (3.15)$$

Die mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen wird aus dem Produkt des absoluten makroskopischen Absorptionswirkungsquerschnittes  $\Sigma_{th,abs}$  und der Geschwindigkeit der thermischen Neutronen ( $v_{th} = 2200 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) berechnet:

$$T_L = \frac{1}{\Sigma_{th,abs} \cdot v_{th}} \quad (3.16)$$

Das Bremsvermögen und die mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen sind für einige Materialien nach diesen Gleichungen berechnet worden (siehe Tabelle 1). Im Bereich der Reaktorphysik werden viele Phänomene, für die die Lebensdauer der Neutronen eine Rolle spielt, anhand von Werten bei 1,46 eV beschrieben. Die Parameter bei 1,46 eV sind deswegen interessant, weil Indium bei dieser Energie eine besonders große Resonanz aufweist (*Cut-off-Energy*).



**Tabelle 1:** Bremsvermögen und mittlere Lebensdauer thermischer Neutronen in verschiedenen Materialien.

Material Dichte [g·cm <sup>-3</sup> ]	H	D	Li	C	O	Al	Fe	Cd	Pb	U	PE (0,95)	Beton (1,6)	Graphit (1,59)
A [u]	1	2	7	12	16	27	56	112	207	238	-	-	-
$\alpha$	0	0,11	0,56	0,72	0,78	0,86	0,93	0,97	0,98	0,98	0,61	0,82	0,72
$\xi$	1	0,73	0,26	0,16	0,12	0,07	0,04	0,02	0,01	0,01	0,29	0,10	0,16
$\nu_{14\text{ MeV} \rightarrow 1,46\text{ eV}}$	16	22	62	102	134	222	456	906	1669	1918	18	33	102
$\nu_{14\text{ MeV} \rightarrow 1/40\text{ eV}}$	20	28	77	128	168	279	571	1135	2092	2404	20	35	128
$\xi\Sigma_{1/40\text{ eV}} [\text{cm}^{-1}]$	0,035	0,012	0,012	0,023	0,006	0,003	0,001	0,002	8,72E-4	0,001	0,001	0,025	0,010
Ts 1,46 eV [ms]	0,035	0,102	0,099	0,053	0,207	0,352	1,16	0,565	1,37	1,07	0,015	0,055	0,116
Ts 1/40 eV [ms]	0,26	0,78	0,75	0,40	1,58	2,67	8,81	4,29	10,42	8,16	0,10	0,36	0,88
T <sub>L</sub> [ms]	0,27	356	2,2	7,6	477,9	0,32	0,07	3,87E-5	0,84	0,04	0,17	0,68	16,77

### 3.3. Neutronenquellen

Die meisten Neutronenquellen beruhen auf Kernreaktionen und nur in einigen Fällen auf Spontanspaltung. Zunächst werden stets schnelle Neutronen freigesetzt, mit kinetischen Energien von mindestens einigen Hundert keV. Erst durch den Einsatz eines Moderators werden die Neutronen thermalisiert. Die Quellstärke [n·s<sup>-1</sup>] hängt dabei von der Art der Neutronenquelle ab, wobei die Emission in der Regel isotrop ist, d. h. in alle Richtungen ( $4\pi$ ) gleichmäßig verläuft.

#### 3.3.1. Forschungsreaktor

Der Forschungsreaktor liefert primär schnelle Neutronen, da diese bei der Kernspaltung mit einer mittleren Energie von 2 MeV freigesetzt werden. Durch die Moderation der Neutronen im Wasser bzw. schwerem Wasser ist der Forschungsreaktor letztendlich eine thermische Neutronenquelle. Über Strahlrohre bzw. Neutronenleiter (*Beamlines*) werden die Neutronen zu den Experimenten geführt. Der thermische Neutronenfluss hat am Ort der PGNAA-Experimente bei modernen Reaktoren eine Größenordnung von  $10^{10}$  n·cm<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup> [Henkelmann2007]. Mithilfe von Monochromatoren können Neutronen energiespezifisch aus dem Neutronenstrahl ausgelenkt werden, sodass Experimente mit kalten Neutronen (5 meV) möglich sind. Diese Bedingungen sind hervorragend für die Neutronen-Aktivierung von kleinen Proben, aber wie im ersten Kapitel gezeigt wurde, leider nicht brauchbar für die Charakterisierung großvolumiger Proben.

#### 3.3.2. Spallationsquelle

Bei einer Spallationsquelle handelt es sich, ähnlich wie bei einem Forschungsreaktor, um eine großtechnische Anlage. Mithilfe eines Beschleunigers werden geladene Teilchen, meistens Protonen, auf ein Ziel (*Target*) aus Schwermetallkernen (z. B. flüssiges Blei) geschossen. Die hochenergetischen Protonen können die Coulomb-Barriere der Kerne überwinden und Stoßreaktionen mit den Nukleonen innerhalb der Kerne verursachen (inelastische Hadron-Kern Wechselwirkung). Es findet innerhalb der Kerne eine intranukleare Kaskade statt, in deren Folge hauptsächlich Neutronen und Protonen freigesetzt werden. Diese können wiederum als Kaskadenteilchen mit weiteren Target-Kernen reagieren. Die hochangeregten „Restkerne“ regen sich in einem Spallationsprozess weiterer

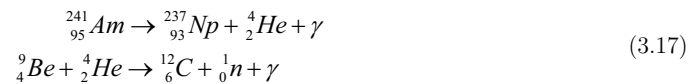
niederenergetischer Nukleonen und massiver Kernbausteine ab. Hierfür ist charakteristisch, dass bevorzugt Neutronen emittiert werden. Es können hochenergetische Neutronenflüsse von über  $10^{15} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  erreicht werden, die damit bis zu zwei Größenordnungen über denen von Forschungsreaktoren liegen [Hanslik2005]. Außerdem reicht die Energie der erzeugten Neutronen bis zu der Energie der auftreffenden Protonen von über 1 GeV. Neben der Grundlagenforschung ist die Transmutation von Actinoiden ein Haupteinsatzgebiet bei der Nutzung von Spallationsquellen. Eine Anwendung dieser Art von Neutronenquelle, z. B. der SINQ-Spallations-Neutronenquelle am PSI (Schweiz), kam im Rahmen dieser Arbeit wegen ihrer Größe und Komplexität nicht infrage.

### 3.3.3. Radioisotope – $^{252}\text{Cf}$ und $^{241}\text{Am}$ - $^9\text{Be}$

Californium gehört zu der Gruppe der Actinoide und zählt zu den Transuranen. Es handelt sich dabei um ein künstliches Element. Das langlebigste Isotop  $^{251}\text{Cf}$  hat eine Halbwertszeit von 900 Jahren. Von den 20 durchweg radioaktiven Isotopen und einem Kernisomer ist  $^{252}\text{Cf}$  für die Neutronenphysik am interessantesten. Es zerfällt nach einer Halbwertszeit von 2,645 Jahren zu 96,908 % durch  $\alpha$ -Zerfall und 3,092 % durch Spontanspaltung [Audi2003]. Dabei werden im Mittel 3,77 Neutronen pro Zerfall emittiert. Im Falle von  $1 \mu\text{g}$   $^{252}\text{Cf}$  werden  $2,31\cdot 10^6$  Neutronen pro Sekunde emittiert.

Californium wird in Form von Californium(III)-Oxid<sup>12</sup> ( $\text{Cf}_2\text{O}_3$ ) als mobile und auch tragbare Neutronenquelle eingesetzt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde diese Quelle nicht benutzt, da die mittlere Neutronenenergie mit 2,5 MeV zu gering für die durchgeführten Studien war. Darüber hinaus ist die Handhabung von  $^{252}\text{Cf}$  erschwert, weil sich die Neutronenemission nicht abschalten lässt und die Quelle permanent einer effektiven Abschirmung bedarf.

Eine andere Möglichkeit freie Neutronen zu erzeugen ist die Verbindung eines  $\alpha$ -Strahlers mit Beryllium. Es sind zwischen 20 und 25 Radioisotope mit Halbwertszeiten zwischen 1 und 1000 Jahren bekannt, die für eine solche Kombination infrage kommen [Hetz2003]. Eine der gebräuchlichsten Verbindungen ist Americium als Oxid mit Beryllium, dabei verlaufen die Reaktionen nach den folgenden Gleichungen ab:



Am-Be-Quellen haben den Vorteil, dass  $^{241}\text{Am}$  eine Halbwertszeit von 432 Jahren hat und so die Quelle über den kompletten Nutzungszeitraum eine gleichbleibende Stärke aufweist. Eine Quelle mit einer Masse von 60 g und einem Verhältnis von 1:10 für Americium zu Beryllium hat eine Neutronenemissionsrate von  $6,2\cdot 10^6 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$  [Jordan1964]. Der Nachteil dabei ist, dass die Quelle ebenfalls Gammas mit einer Energie von 4,44 MeV emittiert.

Technisch besteht die Möglichkeit, durch den Einsatz eines *Choppers*<sup>13</sup> oder eines Rohrpostsystems, die Quellen gepulst zu betreiben. Allerdings ist die Handhabung umständlich und aufwendig.

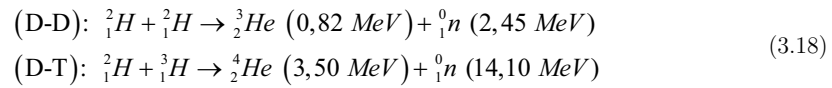
<sup>12</sup> Californium ist ein  $\alpha$ -Strahler und setzt über die Reaktion ( $\alpha$ , n) an Sauerstoff zusätzliche Neutronen frei.

<sup>13</sup> Ein Chopper ist eine Drehscheibe mit einer Öffnung, um einen kontinuierlichen Strahl zu pulsen.

### 3.3.4. (D-D) und (D-T) Neutronengeneratoren

Neutronengeneratoren (NG) sind mittlerweile kommerzielle Produkte, die von verschiedenen Herstellern erworben werden können. Es handelt sich dabei um kompakte und teilweise auch tragbare Systeme. Die Intensität der Neutronenquellen liegen zwischen  $10^8$  und  $10^{10} \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$ , wobei die Quellen mit höherer Intensität auch einer aufwendigeren Kühlung bedürfen. Neuartige Systeme, die auf dem Prinzip des elektrostatischen Trägheitseinschlusses<sup>14</sup> beruhen, befinden sich in Entwicklung [Reijonen2005, NSD2010].

Neutronengeneratoren erzeugen freie Neutronen als Folge einer Fusionsreaktion. Die Energie der emittierten Neutronen hängt dabei von den Reaktionspartnern ab. Zwei Fusionsreaktionen sind für die Nutzung von Neutronengeneratoren am interessantesten:

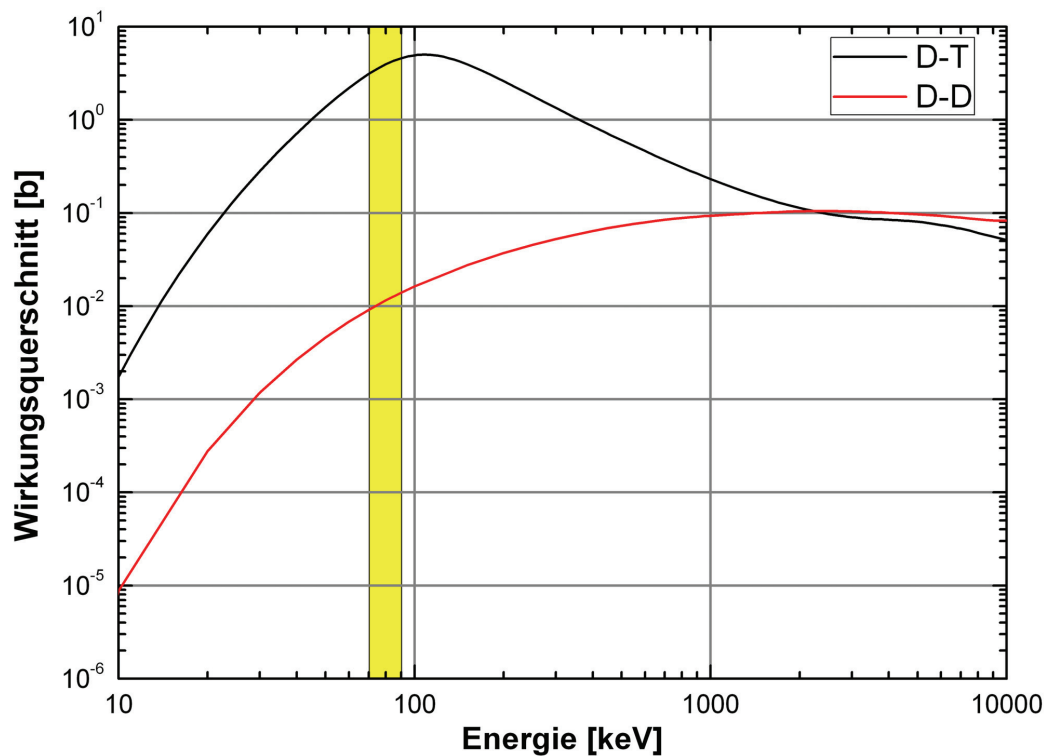


Die folgenden Ausführungen beschränken sich auf einen (D-T)-Neutronengenerator, da dieser Typ im Rahmen dieser Arbeit zur Anwendung kam.

Um die für die Fusion nötige Energie aufzubringen, werden die Deuteronen nach dem Prinzip eines elektrostatischen Beschleunigers auf eine Energie von bis zu 110 keV gebracht. Der für die Fusion entscheidende Wirkungsquerschnitt hat bei 100 keV sein Maximum (siehe Abbildung 6).

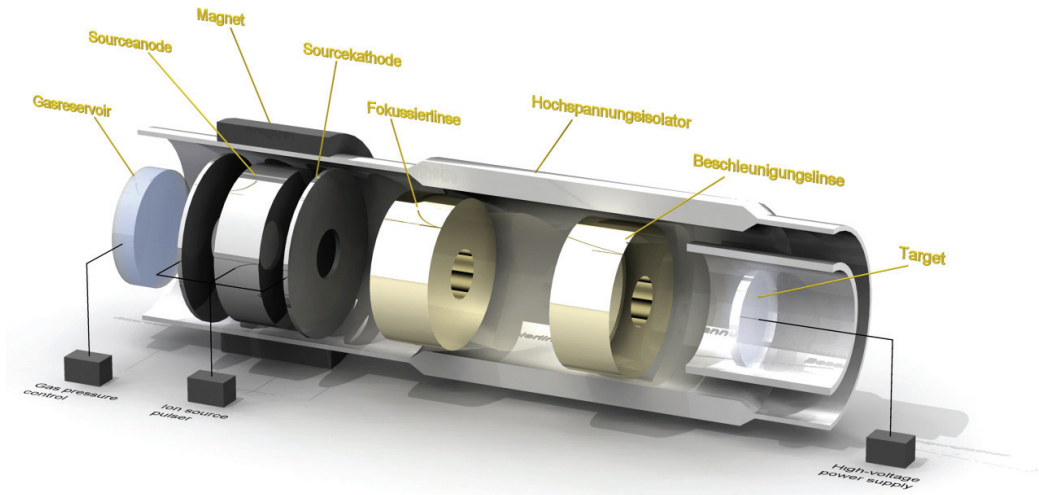
---

<sup>14</sup> Elektrostatischer Trägheitseinschluss (englisch: *inertial electrostatic confinement*, IEC) ist eine von Philo Farnsworth und Robert Hirsch entwickelte Methode, um ein Plasma hoher Dichte und hoher Ionenenergie alleine bzw. vor allem mithilfe eines elektrischen Feldes zu erzeugen. IEC-Anordnungen werden mit dem Ziel gebaut, D-D oder D-T Fusionsreaktionen zu erreichen.



**Abbildung 6:** Wirkungsquerschnitte für die D-D und D-T Fusionsreaktionen in Abhängigkeit von der Deuterium Energie. Der gelbe Bereich kennzeichnet den erlaubten Bereich für die Beschleunigerspannung des Neutronengenerators GENIE 16GT der Firma EADS SODERN. Die Daten stammen aus der ENDFB-VII.0 Datenbank ( $MT=50$ ).

In Abbildung 7 ist der Aufbau eines Neutronengenerators schematisch dargestellt. Das Deuterium haltige Gas wird zunächst ionisiert und die Deuteronen werden anschließend zwischen Kathode und Anode auf die gewünschte Energie beschleunigt. Treffen die Deuteronen dann auf das Tritium-Target läuft die oben genannte Fusionsreaktion ab (siehe Gleichung 3.18). Die freigesetzten Neutronen werden in alle Raumrichtungen  $4\pi$  emittiert (Isotrope-Neutronenquelle).



**Abbildung 7:** Schematische Darstellung eines Neutronengenerators. Deuterium wird im Gasreservoir durch Anlegen einer Spannung von etwa 2 kV ionisiert und die Deuteronen werden anschließend durch eine Hochspannung von bis zu 90 kV auf das Target beschleunigt [Bildnachweis: WipplerTec2009].

Ein großer Vorteil des Neutronengenerators ist, dass er sowohl im Puls- als auch im CW<sup>15</sup>-Modus betrieben werden kann. Dadurch ergeben sich neue Möglichkeiten, die PGNAA für verschiedene Analysemethoden zu optimieren. In Abschnitt 5.2 wird die zyklische Neutronen-Aktivierung mit gepulsten Neutronen beschrieben.

Die Energie der freigesetzten Neutronen ist nicht wirklich monoenergetisch, sie hängt sowohl von dem Emissionswinkel des Neutrons  $\theta$  zur Einfallsrichtung des Deuterons  $0^\circ$ , als auch von der Energie des einfallenden Deuterons ab (siehe Abbildung 8). In dem Fall, dass die kinetische Energie des Deuterons gerade die Schwelle für die Fusionsreaktion besitzt, liegt die Energie des emittierten Neutrons bei 14,1 MeV.

---

<sup>15</sup> CW = constant wave

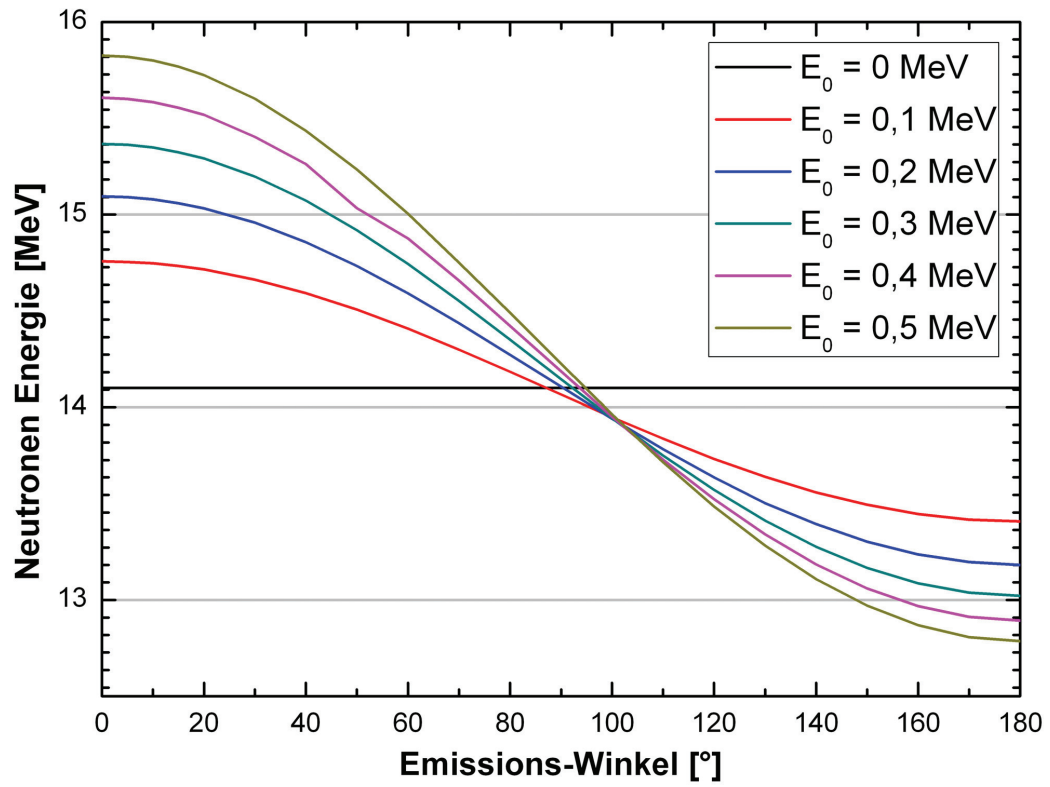


Abbildung 8: Neutronenenergie als Funktion des Emissions-Winkels  $\Theta$  und der Energie  $E_0$  der Deuteronen für eine D-T-Reaktion (relativistischer Fall) [Nargolwalla1973].



# Kapitel 4

## Photonenreaktionen und Detektorsysteme

### **Zusammenfassung**

Um die Prompt-Gamma-Spektren zu analysieren und zu interpretieren, ist es wichtig, die Wechselwirkungen von Photonen mit Materie zu verstehen. In diesem Kapitel wird daher ein kurzer Überblick der möglichen Photonenreaktion gegeben. Dabei werden der Vollständigkeit halber auch Prozesse kurz erklärt, die in der Allgemeinliteratur zu finden sind. Desweiteren werden die beiden wesentlichen Detektorsysteme zur Messung von Gamma-Strahlung beschrieben, wobei auf die in dieser Arbeit verwendeten Halbleiterdetektoren näher eingegangen wird.



## 4.1. Wechselwirkungen von Photonen mit Materie

Ein Gamma-Quant kann in verschiedenster Art und Weise mit der Materie wechselwirken. Die Wechselwirkungspartner können freie oder gebundene Elektronen, die Atomkerne oder ihre elektrischen Felder sein. Dabei können Energieverlust, Änderungen der Ausbreitungsrichtung (Streuung) sowie Vernichtung der Gamma-Quanten beobachtet werden. Diese Fülle an Wechselwirkungsprozessen steht in Abhängigkeit von der Energie der Quanten und der Kernladungszahl der Absorberatome. Im Falle der Gamma-Spektroskopie spielen vor allem der Photoelektrische-Effekt, der Compton-Effekt und die Paarbildung eine wichtige Rolle.

### 4.1.1. Der Photoelektrische-Effekt

Beim Photoelektrischen-Effekt, kurz Photo-Effekt, werden Elektronen aus der Atomhülle herausgeschlagen<sup>16</sup>. Es handelt sich dabei um eine Absorption des Gamma-Quants, die jedoch nur dann auftreten kann, wenn die Energie  $E_\gamma$  des Gamma-Quants größer als die Bindungsenergie  $E_B$  des Elektrons ist. Die kinetische Energie  $E_{kin}$ , die das Elektron nach dem Verlassen der Elektronenhülle hat, wird durch die Einstein-Gleichung beschrieben [Schpolski1988, S. 351]:

$$E_{kin} = E_\gamma - E_B \quad (4.1)$$

Anstatt von Bindungsenergie wird auch häufig von der Austrittsarbeit gesprochen. Die Größenordnung der Bindungsenergie liegt im Bereich einiger eV. Es gibt vier Arten des photoelektrischen Effekts, den äußeren photoelektrischen Effekt, den inneren photoelektrischen Effekt, den photovoltaischen Effekt und die Photoionisation. Der innere photoelektrische Effekt führt in Halbleitern zu einer Änderung der elektrischen Leitfähigkeit. Bei dem Bau von Detektoren wird diese Eigenschaft für den Nachweis der Gamma-Strahlung genutzt.

Nach der Emission des Elektrons aus der Elektronenhülle befindet sich diese in einem instabilen Zustand. Das Loch in der K-Schale (oder in einer höheren Schale) wird durch ein Elektron aus einer höheren Schale aufgefüllt. Dieser Prozess wiederholt sich bis zur letzten Schale in der Elektronenhülle. Die bei diesen Prozessen freiwerdenden Gamma-Quanten können in Form eines charakteristischen Röntgenspektrums gemessen werden (die Charakteristik hängt vom jeweiligen Element ab).

Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{ph}$  für den Photo-Effekt hängt stark von der Kernladungszahl  $Z$  und der Energie  $E_\gamma$  des Gamma-Quants ab, sodass sich folgende Proportionalität ergibt [Knoll1989, S. 50ff]:

$$\sigma_{ph} \propto Z^\alpha \cdot E_\gamma^\delta \quad (4.2)$$

wobei  $\alpha$  zwischen 4 bis 5 liegt und  $\delta \approx -3,5$  ist. Für höhere Energien ( $E_\gamma > 5$  MeV) sinkt  $\delta$  bis auf den Wert -1 ab.

Die unstetige Änderung des Wirkungsquerschnitts ist auf die Absorption des Gamma-Quants zurückzuführen (z. B. hat Germanium bei 11 keV eine Resonanz).

---

<sup>16</sup> Es wird von Ionisation gesprochen, wenn das Atom zuvor neutral war.

Für den Photo-Massenschwächungskoeffizient  $\tau/\rho$  [cm<sup>2</sup>·g<sup>-1</sup>] gilt:

$$\frac{\tau}{\rho} \propto \frac{Z^4}{E_\gamma^3} \quad (4.3)$$

#### 4.1.2. Der Compton-Effekt

Beim Compton-Effekt handelt es sich um eine inelastische Streuung eines Gamma-Quants an quasi-freien Elektronen. Durch diesen Streuprozess vergrößert sich die Wellenlänge des Photons um den Betrag  $\Delta\lambda$  (die Frequenz und Energie nehmen entsprechend ab). Für freie bzw. ruhende Elektronen gilt [Knoll1989, S. 290]:

$$\Delta\lambda = \frac{h}{m_0 \cdot c} (1 - \cos \varphi) \quad (4.4)$$

mit dem Streuwinkel  $\varphi$ . Der Compton-Effekt als Wechselwirkungsprozess dominiert im Bereich zwischen 500 keV und 5 MeV, wobei der tatsächliche Bereich vom Streumaterial abhängt [Schpolski1988, S. 367]. Ist das Elektron, an dem gestreut wird, an ein Atom gebunden, gilt diese Gleichung nur näherungsweise, da der ursprüngliche Impuls des Elektrons in der Atomhülle nicht bekannt ist. In diesem Zusammenhang spricht man von der Doppler-Verbreiterung und meint damit den Einfluss bei der Bestimmung des Streuwinkels bzw. der Ursprungsrichtung des einfallenden Photons.

Für die Energie  $E_\gamma$  des gestreuten  $\gamma$ -Quants lässt sich folgende Gleichung herleiten [Finke2005]:

$$E_\gamma = E_\gamma \frac{1}{1 + \psi \cdot (1 - \cos \varphi)} \quad \text{mit} \quad \psi = \frac{E_\gamma}{m_0 \cdot c^2} \quad (4.5)$$

Bei einem Streuwinkel  $\varphi = 180^\circ$  (Rückstreuung) wird die maximale Energie von dem Photon auf das Elektron übertragen:

$$E_{e,\max} = E_\gamma \frac{2 \cdot \psi}{1 + 2 \cdot \psi} < E_\gamma \quad (4.6)$$

Das Gamma-Quant wird beim Compton-Effekt niemals seine gesamte Energie auf das Elektron übertragen. Das beobachtete Spektrum reicht von  $\varphi = 0^\circ$  bis  $180^\circ$ . Der Compton-Effekt ist eine unerwünschte Nebenerscheinung in der Gamma-Spektroskopie, da hier nur ein variierender Bruchteil der Gamma-Energie an den Detektor abgegeben wird.

Die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten des Compton-Effekts wird durch den Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{Co}$  beschrieben. Dieser verläuft näherungsweise linear mit der Kernladungszahl  $Z$ , da die Anzahl der für die Streuung verfügbaren Elektronen proportional zur Kernladungszahl ist. Der Wirkungsquerschnitt hängt in komplizierter Weise von der Quantenenergie ab, hierzu haben Klein und Nishina [Finke2005] eine Beziehung gefunden. Der differentielle Wirkungsquerschnitt lautet:

$$\frac{d\sigma_{Co}}{d\Omega} = Z \cdot r_0^2 \cdot \left( \frac{1}{1 + \psi \cdot (1 - \cos \varphi)} \right)^2 \cdot \left( \frac{1 + \cos^2 \varphi}{2} \right) \cdot \left( 1 + \frac{\psi^2 \cdot (1 - \cos \varphi)^2}{(1 + \cos^2 \varphi) \cdot (1 + \psi \cdot (1 - \cos \varphi))} \right) \quad (4.7)$$

$$\Rightarrow \sigma_{Co} \propto Z \cdot r_0^2 \quad (4.8)$$

mit  $r_0$  dem klassischen Elektronenradius.

Für den Compton-Massenschwächungskoeffizient  $\sigma/\rho$  [cm<sup>2</sup>·g<sup>-1</sup>] gilt:

$$\frac{\sigma}{\rho} \propto \frac{1}{E_\gamma} \quad (4.9)$$

### 4.1.3. Die Paarbildung

Bei der Paarbildung handelt es sich um die Reaktion:

$$\gamma + \text{Kern} \rightarrow e^+ + e^- + \text{Kern} \quad (4.10)$$

Paarbildung kann erst ab einer Energie des Gamma-Quants auftreten, die größer als die doppelte Ruhemasse des Elektrons  $E_\gamma > 2 \cdot m_0 c^2$  ist.

Dieser Prozess muss innerhalb des Coulomb-Feldes eines Atomkerns stattfinden, damit dieser den Impuls des Gamma-Quants aufnehmen kann. Das Gamma-Quant verschwindet und zurück bleiben ein Positron und ein Elektron, wobei die Energie oberhalb von 1022 keV komplett als kinetische Energie an das Positron und Elektron übergeht.

Der gleiche Prozess kann auch mit einem Elektron als Wechselwirkungspartner stattfinden [Finke2005]:

$$\gamma + e^- \rightarrow e^+ + e^- + e^- \quad (4.11)$$

Hier liegt die Schwellenergie doppelt so hoch wie bei der Paarbildung am Kern ( $2 \cdot E_0 = 4 \cdot m_0 c^2$ ). Die Ursache hierfür liegt bei der Rückstoßenergie  $E_{\text{rück}} = p^2/(2 \cdot M)$ , wobei  $M$  die Atommasse ist. Diese Energie ist im Fall mit dem Atomkern vernachlässigbar, aber für die Wechselwirkung mit dem Elektron beträchtlich.

Nachdem das Positron seine kinetische Energie, genau wie das schnelle Elektron, abgegeben hat und quasi zur Ruhe gekommen ist, geht es mit einem Elektron zusammen und wird vernichtet. Dabei entstehen zwei charakteristische Gamma-Quanten mit der Ruheenergie des Elektrons (511 keV), die in einander entgegengesetzte Richtung fliegen.

Der Wirkungsquerschnitt der Paarbildung  $\sigma_{Pa}$  lässt sich durch folgende Gleichung beschreiben:

$$\sigma_{Pa} \propto Z^2 \cdot \ln \left( \frac{E_\gamma}{m_0 \cdot c^2} \right) \text{ für } 5 \cdot m_0 \cdot c^2 < E_\gamma < 50 \cdot m_0 \cdot c^2 \quad (4.12)$$

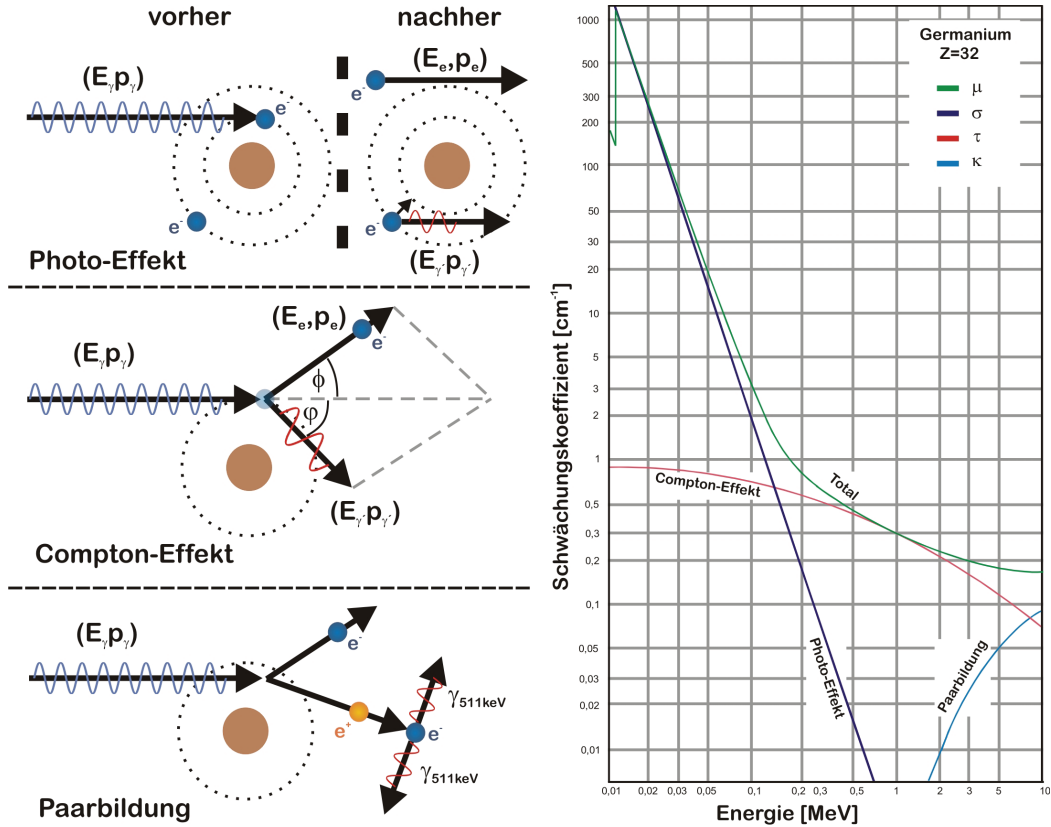
Für den Paar-Massenschwächungskoeffizient  $\kappa/\rho$  [cm<sup>2</sup>·g<sup>-1</sup>] gilt:

$$\frac{\kappa}{\rho} \propto Z \cdot \ln E_\gamma \quad (4.13)$$

Der totale Massenschwächungskoeffizient  $\mu/\rho$  setzt sich additiv aus den einzelnen Absorptionskoeffizienten zusammen:

$$\frac{\mu}{\rho} = \frac{\tau}{\rho} + \frac{\sigma}{\rho} + \frac{\kappa}{\rho} \quad (4.14)$$

In Abbildung 9 sind die drei Effekte und ihre Schwächungskoeffizienten für Germanium dargestellt.



**Abbildung 9:** Schematisch Darstellung des Photo-Effekts, Compton-Effekts und der Paarbildung. Das Diagramm auf der rechten Seite zeigt den Verlauf der Schwächungskoeffizienten für Germanium  $\rho = 5,32 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

#### 4.1.4. Abschirmung der Gamma-Strahlung

Die Abschirmung der Gamma-Strahlung hängt im Wesentlichen von der Dicke, der Dichte und der relativen Atommasse  $M$  der Elemente der zu untersuchenden Probe ab. Darüber hinaus steigt die Absorption mit abnehmender Gamma-Energie. Besonders für Gammas unterhalb von 500 keV ist die Abschirmung signifikant. Für die Selbstabsorption innerhalb einer zylindrischen Probe hat der Abschwächungskoeffizient die folgende Gestalt [Molnár2004, S. 66]:

$$a_s = \frac{8}{3\pi} \cdot \mu(E_\gamma) \cdot r - \frac{1}{2} \mu(E_\gamma)^2 r^2 \quad (4.15)$$

Hierbei ist  $\mu(E_\gamma)$  der energieabhängige totale Schwächungskoeffizient (siehe Gleichung 4.14) und  $r$  der Radius der Probe.

## 4.2. Detektoren in der Gamma-Spektroskopie

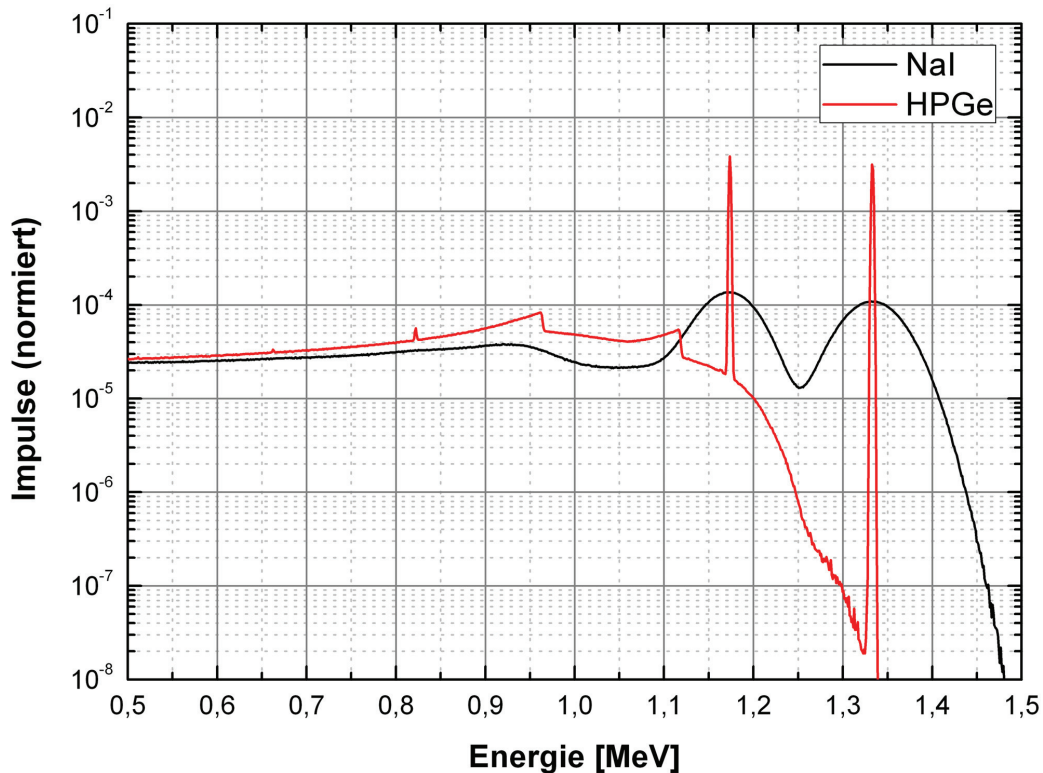
Im Bereich der Gamma-Spektroskopie werden Szintillations- und Halbleiterdetektoren zum Nachweis der Strahlung genutzt. Bei den Szintillationsdetektoren ist Natriumiodid (NaI), das mit geringen Mengen Thallium (Tl, ca. 0,1 %) dotiert wurde, als Szintillator am gebräuchlichsten. Durch die oben beschriebenen Wechselwirkungen der Gamma-Quanten mit dem Detektormaterial werden freie Elektronen erzeugt, die das Ionengitter des NaI-Kristalls anregen. Die Anregungsenergie wird dabei von den Tl-Atomen ohne nennenswerte Verzögerungen als Licht abgegeben. Diese Lichtquanten lösen dann in einer Photokathode Elektronen aus, die in einer Photomultiplier-Röhre in mehreren Stufen verstärkt werden (Verstärkungsfaktor  $10^5$  bis  $10^6$ ), sodass ein messbares Signal entsteht. Die Anzahl der Sekundärelektronen ist der Energie des auslösenden Gamma-Quants proportional, wodurch sich unter Verwendung eines Vielkanalanalysators (MCA<sup>17</sup>) eine energieauflösende Gamma-Spektroskopie durchführen lässt. Der große Vorteil der Szintillationsdetektoren gegenüber den Halbleiterdetektoren liegt in ihrer hohen Lichtausbeute. Dafür haben Letztere ein viel besseres Energieauflösungsvermögen.

Die Funktionsweise eines Halbleiterdetektors soll im Folgenden kurz am Beispiel des Reinstgermanium-Detektors (HPGe<sup>18</sup>, Reinheit > 99,999 %) beschrieben werden. An zwei Elektroden, zwischen denen sich das hochreine Germanium befindet, wird eine Spannung von bis zu 5 kV angelegt. Desweiteren wird der Germanium-Kristall über einen Kühlfinger aus Kupfer bei der Temperatur des siedenden Stickstoffs (77 K bzw. -196 °C) betrieben, damit das Leitungsband nicht bereits durch thermische Elektronen bevölkert wird. Durch die Wechselwirkung der ionisierenden Strahlung mit dem Germanium werden Elektron-Loch-Paare gebildet. Die Elektronen und Löcher trennen sich anschließend durch die angelegte Spannung. Die Ladungsträger werden an den Elektroden gesammelt und erzeugen einen Impuls, der am Arbeitswiderstand des Detektors als Spannungsimpuls abgegriffen wird. Die hohe Energieauflösung des HPGe- gegenüber dem NaI-Detektor kommt nun dadurch zustande, dass die Gap<sup>19</sup>-Energie beim Germanium nur etwa 0,67 eV (bei 300 K) beträgt. Im Gegensatz dazu sind mindestens 300 eV notwendig um ein Elektron an der Photokathode eines Szintillators abzulösen [ETH2008]. In Abbildung 10 ist das Spektrum einer simulierten <sup>60</sup>Co-Punktquelle dargestellt. Der direkte Vergleich zwischen dem HPGe- und dem NaI-Detektor verdeutlicht die wesentlich bessere Energieauflösung, die durch die Verwendung eines Halbleiterdetektors erzielt werden kann.

<sup>17</sup> MCA = Multi channel analyzer

<sup>18</sup> HPGe = Hyperpure Germanium

<sup>19</sup> Das *Gap* ist die Bandlücke zwischen Leitungs- und Valenzband.



**Abbildung 10:** Ausschnitt aus dem Gamma-Spektrum einer  $^{60}\text{Co}$ -Punktquelle. Die beiden Spektren wurden mit MCNP berechnet und für den direkten Vergleich auf ein Quellphoton normiert. Der HPGe-Detektor wurde mit einer rel. Effizienz von 100 % simuliert, um ihn mit dem Standard-NaI-Detektor (3 x 3 Zoll) zu vergleichen.

#### 4.2.1. Effizienz des Detektors

Die Detektor-Effizienz ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, dass ein Gamma-Quant einer Quelle mit einer bestimmt Energie im sensitiven Bereich des Detektors vollständig absorbiert wird. Bei  $\alpha$ - bzw.  $\beta$ -Teilchen findet eine Ionisierung und Anregung des Detektormaterials statt, sobald sie das aktive Detektorvolumen erreichen. Schon nach einer kurzen Strecke haben sie genug Ionenpaare erzeugt, damit der damit verbundene Puls groß genug ist, um gemessen zu werden. Daher ist es möglich nahezu jedes  $\alpha$ - bzw.  $\beta$ -Teilchen nachzuweisen, die Zähleffizienz liegt bei nahezu 100 %.

Bei ungeladenen Teilchen, wie Neutronen oder Gamma-Quanten ist eine Wechselwirkung mit dem Detektormaterial weniger wahrscheinlich. Diese Teilchen legen eine größere Distanz zurück und die Effizienz liegt oft unterhalb von 100 %. In diesem Zusammenhang werden häufig unterschiedliche Definitionen der Effizienz genutzt. Die vier gebräuchlichsten sind die absolute, intrinsische, relative und Photopeak (*Full-Energy Peak*) Effizienz:

Die **intrinsische Effizienz** ist das Verhältnis der vom Detektor registrierten Ereignisse zu den im Detektor eintreffenden Gammaquanten:

$$\varepsilon_{\text{int}} = \frac{\text{Anzahl der Ereignisse im Photopeak}}{\text{Anzahl der im Detektor eintreffenden Gammas}} = \frac{\sum P_{\gamma}}{A_t \cdot I_{\gamma} \cdot t_c} \quad (4.16)$$

mit der Photopeakfläche  $P_{\gamma}$ , der Aktivität  $A_t$  der Quelle zum Zeitpunkt der Messung, der Intensität  $I_{\gamma}$  der Gammalinie und der Messzeit  $t_c$ .

Die **absolute bzw. geometrische Effizienz** ist das Verhältnis der vom Detektor registrierten Ereignisse zu den von der Quelle emittierten Gamma-Quanten (in alle Richtungen).

$$\varepsilon_{\text{abs}} = \varepsilon_{\text{int}} \cdot \eta \quad (4.17)$$

Am Beispiel einer Punktquelle stellt sich der Geometriefaktor  $\eta$  wie folgt dar:

$$\eta = \frac{\Omega}{4 \cdot \pi} \quad \text{bzw.} \quad \eta = \frac{1 - \cos(\arctan(r/d))}{2} \quad (4.18)$$

wobei  $\Omega$  der Raumwinkel (Steradian) zwischen Quelle und Detektor ist:

$$\Omega = 2 \cdot \pi \cdot \left( 1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + r^2}} \right) \quad (4.19)$$

Hier ist  $d$  der Abstand zwischen der Quelle und dem Detektor-Kristall,  $r$  ist der Radius der Detektor-Kristall-Frontfläche.

Die **relative Effizienz** ist die Effizienz eines Detektorkristalls im Verhältnis zu einem anderen. Im Allgemeinen einem NaI(Tl)-Kristall mit 7,62 cm (3 Zoll) im Durchmesser und einer Länge von 7,62 cm (3 Zoll). Die Effizienz wird in der Regel für die 1,33 MeV-Gamma-Linie einer  $^{60}\text{Co}$ -Punktquelle in 25 cm Abstand zum Detektor angegeben [Canberra].

Die **Photopeak-Effizienz** beschreibt das Verhältnis einzelner Gamma-Linien zum Photopeak. Damit ist die Effizienz gemeint, mit der ein Full-Energy-Peak-Puls erzeugt wird, bevor ein Puls eines anderen Gamma-Quants erzeugt wird:

$$\varepsilon_{\text{ph}} = \frac{P_{\gamma}}{A_t \cdot I_{\gamma} \cdot t_c} \quad (4.20)$$

#### 4.2.2. Detektor Typen – Halbleiter-Detektoren

Ge-Halbleiterdetektoren werden je nach Anwendung mit unterschiedlichen Fremdatomen dotiert. Bei der Dotierung werden diese Fremdatome gezielt in den Halbleiter eingebracht. Die Konzentrationen sind in der Regel sehr gering (Größenordnung ca.  $10^{-5}$  Fremdatome pro Atom). Die Fremdatome sind Störstellen im Halbleitermaterial und verändern gezielt die Eigenschaften des Ausgangsmaterials, meistens die Leitfähigkeit oder die Kristallstruktur. Bei der n-Dotierung von Germanium (vierte Hauptgruppe) werden Phosphor, Arsen oder Antimon (fünfte Hauptgruppe) in den Halbleiter eingebracht. Diese haben ein Außenelektron mehr als das Germanium. Durch den Einbau in das Kristallgitter wird das Elektron der Donatoren ungebunden und steht somit für den Ladungstransport zur Verfügung. Im Falle der p-Dotierung werden Bor, Aluminium, Gallium oder

Indium (dritte Hauptgruppe) in den Kristall eingebracht. Infolge des fehlenden Außenelektrons entsteht ein Loch oder auch Defektelektron genannt, das als positiver Ladungsträger fungiert. N-Typ- und p-Typ-Detektoren haben im Wesentlichen die gleichen Eigenschaften, weisen aber im niederenergetischen Bereich große Unterschiede bzgl. der Effizienz auf. Durch die unterschiedliche Kontaktierung ist die Effizienz der n-Typ-Detektoren im Bereich unter 100 keV um bis zu eine Größenordnung besser als beim p-Typ.

Die Struktur der Halbleiter-Kristalle ist relativ empfindlich gegenüber der einfallenden Strahlung. Besonders schnelle Neutronen können einen großen Schaden im Vergleich mit gleichwertiger Röntgen- bzw. Gamma-Strahlung hervorrufen. Durch die Strahlenschäden wird der Ladungstransport im aktiven Detektor-Volumen gemindert, sodass in Abhängigkeit von der Position der Ereignisse die Pulshöhen der Signale variieren können. Die Auflösung eines dicken planen Germanium-Detektors wird ab einem Neutronenfluss von ca.  $10^9 \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  erheblich gemindert und ab einer Bestrahlung von  $10^{10} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$  wird der Detektor unbrauchbar. N-Typ-Detektoren zeigen eine weniger starke Leistungsminderung gegenüber Strahlenschäden im Vergleich zu p-Typen. In einer Studie [Pehl1981] konnte gezeigt werden, dass ein n-Typ-Detektor bis zu 28 Mal länger einem hohen Neutronenfluss standhalten kann als ein p-Typ gleicher Konfiguration. Der Grund für diesen Unterschied liegt in der Tatsache, dass die Kristallgitterschäden Löcher eher einfangen als Elektronen. In Abhängigkeit von der Größe des Detektors ist es entscheidend, welche „Teilchensorte“ zum Zentrum des Detektors hin driftet.

Aus diesem Grund sind n-Typ-Detektoren die bessere Wahl, wenn es darum geht, dass in einem Neutronenumfeld gleichzeitig die Prompt-Gamma-Strahlung gemessen werden soll. Ein weiterer Vorteil von HPGe-Detektoren gegenüber den älteren Ge(Li)-Detektoren, ist die Möglichkeit Strahlenschäden durch Ausheizen zu beseitigen, sofern die Schäden unter  $4\cdot 10^9$  Störstellen pro  $\text{cm}^2$  liegen. Dazu wird der Kristall über den Kühlfinger mit einem Heizelement für 72 Stunden auf  $120^\circ\text{C}$  aufgeheizt.





# Kapitel 5

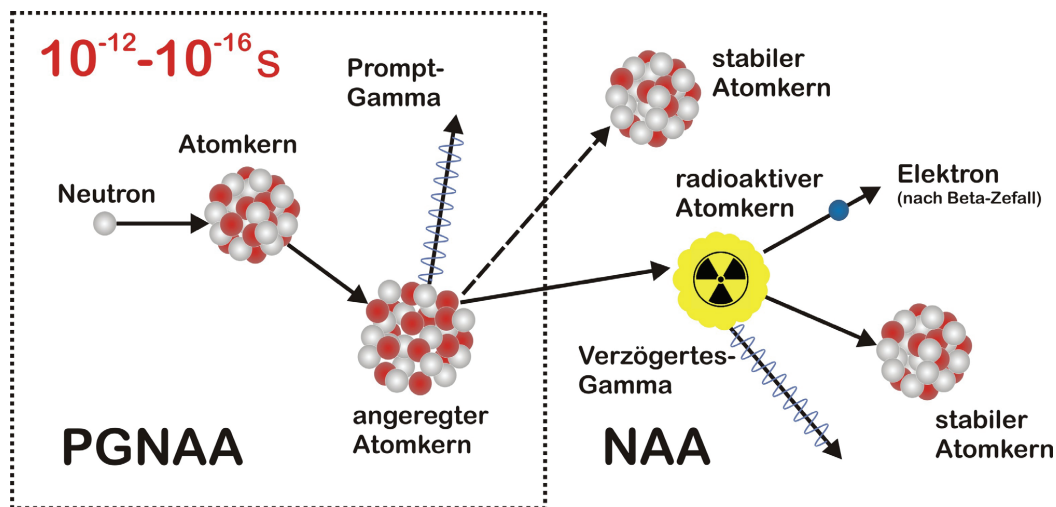
## Das PGNAA-Verfahren

### **Zusammenfassung**

Die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse ist die grundlegende Methode für die zerstörungsfreie Charaktisierung der großvolumigen Proben im Rahmen dieser Arbeit. Dieses Multielement-Analyseverfahren erfasst online, also simultan während der Neutronen-Aktivierung, die Gamma-Spektren der zu untersuchenden Proben. Durch die Verwendung einer Primärteilchenquelle mit schnellen Neutronen ergeben sich sowohl Vor- als auch Nachteile. In diesem Kapitel wird die zyklische Neutronen-Aktivierung vorgestellt, mit deren Hilfe eine Optimierung des PGNAA-Verfahrens erreicht werden konnte.

### 5.1. Physikalische Grundlagen der PGNAA mit schnellen Neutronen

Das PGNAA-Verfahren mit schnellen Neutronen nutzt das komplette Spektrum der in Kapitel 3 beschriebenen Wechselwirkungen der Neutronen mit den Nukliden. Es wird im Wesentlichen zwischen zwei Phasen unterschieden. In der ersten Phase wird die Gamma-Strahlung, die während der Bestrahlung entsteht, gemessen (Prompte-Analyse). Anschließend wird in der zweiten Phase die Gamma-Strahlung des radioaktiven Zerfalls, der durch die Bestrahlung möglicherweise entstandenen Radionuklide gemessen (Verzögerte-Analyse). Beispielhaft ist in Abbildung 11 der schematische Ablauf des Neutroneneinfangs mit simultaner Photonenemission dargestellt. Diese Kernreaktion dominiert in der Regel die PGNAA, sofern die schnellen Neutronen durch einen Moderator thermalisiert werden.



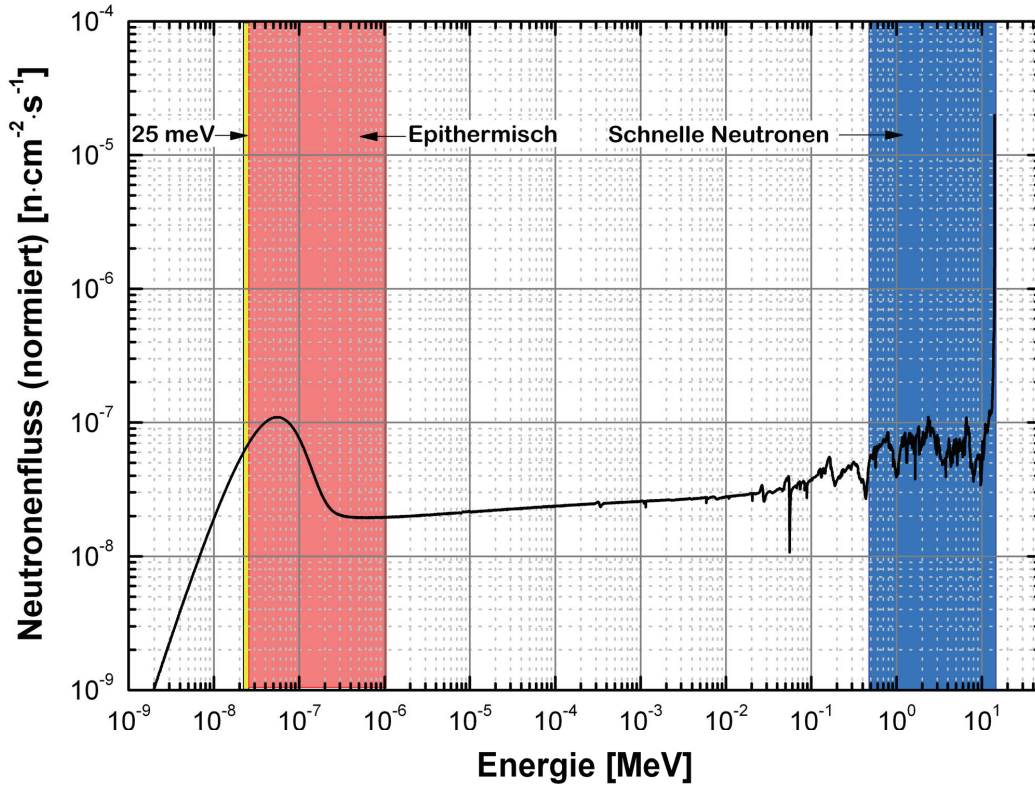
**Abbildung 11:** Die PGNAA im Vergleich zur NAA. Das Neutron trifft auf den Atomkern. Dieser wird dadurch angeregt und emittiert innerhalb von etwa  $10^{-12}$  Sekunden mehrere Prompt-Gammas. Der angeregte Atomkern kann stabil oder radioaktiv sein. Der radioaktive Atomkern zerfällt wiederum nach einer nuklidspezifischen Halbwertszeit und emittiert dabei verzögerte Photonen. Die Abbildung zeigt beispielhaft den  $\beta$ -Zerfall, wobei der Atomkern je nach Nuklid auch über einen  $\alpha$ -Zerfall oder eine spontane Spaltung abreakieren kann.

Normalerweise werden für die PGNAA, z. B. am FRM II in Garching, thermische bzw. kalte Neutronen genutzt. Diese stellen praktisch eine monoenergetische Neutronenquelle dar, wobei die Wirkungsquerschnitte für die Neutronenwechselwirkungen<sup>20</sup> in diesem Energiebereich weitreichend bekannt sind. Kleine Proben können dadurch mit einer sehr hohen Nachweisempfindlichkeit charakterisiert werden, für einige Elemente werden Nachweisgrenzen von 100 ppb erreicht [Alfassi1994, Molnár2004].

Die PGNAA mit schnellen Neutronen für die Charakterisierung großvolumiger Proben hat hierzu einige Unterschiede aufzuweisen. Aus der quasi-monoenergetischen Quelle mit 14 MeV Neutronen

<sup>20</sup> Aufgrund der geringen Energie der Neutronen kann davon ausgegangen werden, dass der Neutroneneinfang die Wechselwirkungen dominiert.

wird durch die Moderation in der Probe und der Messkammer ein Neutronenspektrum von  $< 10$  meV bis 14 MeV erzeugt. Es finden dann alle möglichen Neutronenwechselwirkungen bei ganz unterschiedlichen Wirkungsquerschnitten statt. Das Neutronenspektrum wird sowohl durch die Probengröße und Dichte, als auch durch die Auslegung der Messkammer beeinflusst. In Abbildung 12 ist das berechnete Neutronenspektrum, für das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte PGNAA-Prototypensystem, bei der Bestrahlung eines 25-l-Beton-Probenfasses dargestellt.



**Abbildung 12:** Spektrum für den auf ein Quellteilchen normierten Neutronenfluss innerhalb des Betonfasses, über das ganze Fassvolumen gemittelt. Das Neutronenspektrum wurde mit MCNP für ein Fass mit einer Betonprobe der Dichte  $1,6 \text{ g·cm}^{-3}$  berechnet. Das Integral über den Energiebereich des kalten, thermischen und epithermischen Neutronenflusses ergibt einen Wert von  $8,99 \cdot 10^{-5} \text{ n·cm}^{-2}·\text{s}^{-1}$ . Im Vergleich dazu ist der integrierte schnelle Neutronenfluss mit  $1,13 \cdot 10^{-4} \text{ n·cm}^{-2}·\text{s}^{-1}$  etwa um das 1,25 Fache größer.

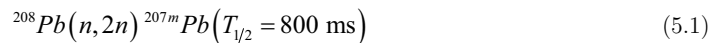
Der eigentliche Nachteil, dass bei der PGNAA mit schnellen Neutronen alle möglichen Wechselwirkungen stattfinden, kann zum Vorteil der Analyse genutzt werden. Dazu ist es allerdings notwendig die Probenbestrahlung gepulst durchzuführen. Durch ein geeignetes Timing werden die gepulste Bestrahlung und die Messung des Prompt-Gamma-Spektrums aufeinander abgestimmt. Die Messintervalle werden auf die zum jeweiligen Zeitpunkt dominierenden Kernreaktionen hin optimiert. Während des kurzen Neutronenpulses dominiert die Prompt-Gamma-Aktivität, resultierend aus den Reaktionen mit schnellen Neutronen. Diese zum Teil recht hohe Aktivität erschwert die Messung mit dem hochempfindlichen Detektor, die deshalb im Rahmen dieser Arbeit kaum möglich war. Nach dem Neutronenpuls können die verzögerten Aktivitäten der Nuklide, die durch Reaktionen mit

schnellen Neutronen gebildet wurden, bei einem viel geringeren Compton-Hintergrund gemessen werden. Ein gutes Beispiel für diesen Fall ist die Reaktion  $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ , der radioaktive Kern zerfällt mit einer Halbwertszeit von 2,25 min und sendet dabei unter anderem Gammas mit einer Energie von 1779 keV aus. Infolge des Neutronenpulses und der anschließenden Moderation baut sich ein thermisches Neutronenfeld ähnlich der thermischen Säule in einem Reaktor auf. Sofern die Probenkammer aus Graphit besteht, stellt sich nach wenigen Pulszyklen ein thermisches Gleichgewicht ein, da die Lebensdauer der thermischen Neutronen im Graphit mit etwa 17 ms wesentlich länger ist als die in dieser Arbeit ausgewählten Pulsperiode von 0,5 – 2 ms. Die Prompt-Gamma-Aktivität mit den thermischen Neutronen wird parallel zu der Verzögerten-Gamma-Aktivität mit den schnellen Neutronen gemessen werden. Eine der stärksten Aktivitäten geht vom Wasserstoff aus, der im Beton mit einem Anteil zwischen 0,4 und 1 % vertreten ist [VDZ2007, S. 553ff]. Der Wirkungsquerschnitt für die Reaktion  $^1\text{H}(n, \gamma)^2\text{H}$  weist einen Wert von 0,33 b auf. Zusammen mit den anderen beiden Aktivitäten kann auch die Verzögerte-Gamma-Aktivität mit thermischen Neutronen zwischen den Pulsen gemessen werden.

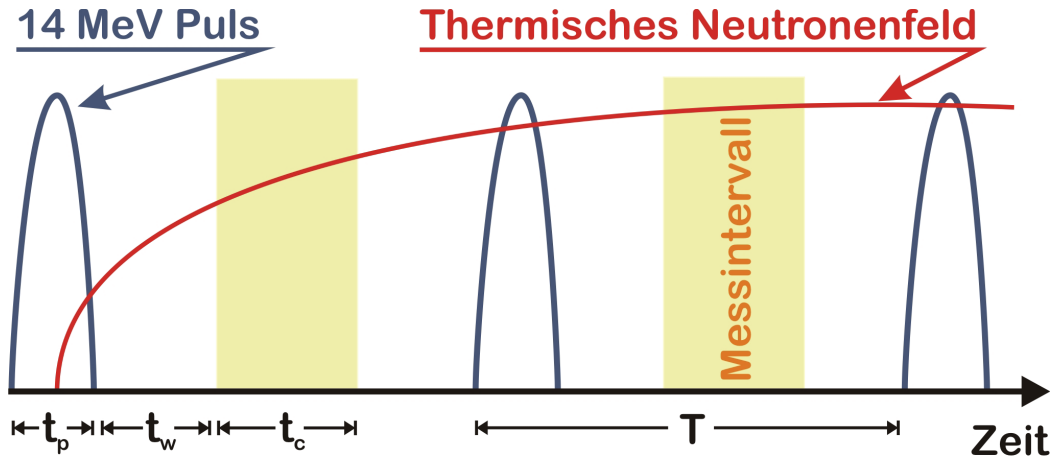
Die Pulslänge, die Repetitionszeit und die Messzeit müssen aufeinander abgestimmt werden. Dazu müssen die Moderationseigenschaften sowohl der Probe, als auch der Messkammer abgeschätzt bzw. berechnet werden. Trotz aller Bemühungen die geeigneten Parameter für die zyklische Neutronen-Aktivierung zu berechnen, konnten einige Interferenzen nicht ausgeschlossen werden. So wird z. B. die 1779-keV-Gamma-Linie sowohl von der Reaktion  $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ , als auch von der Reaktion  $^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$  erzeugt. Bei der Auswertung der Gamma-Spektren müssen diese Interferenzen berücksichtigt werden.

## 5.2. Zyklische Neutronen-Aktivierung

Durch eine zyklische Neutronen-Aktivierung können die Systemparameter so eingestellt werden, dass die relative Empfindlichkeit des Systems optimiert wird. Neben den oben erwähnten Vorteilen der zyklischen Aktivierung profitiert die PGNAA zusätzlich von einem verminderten Compton-Untergrund, wodurch die gezielte Suche nach bestimmten Elementen erleichtert wird. Beispielsweise wird Blei über eine Kernreaktion mit schnellen Neutronen nachgewiesen:



Die bei dem Zerfall von  $^{207\text{m}}\text{Pb}$  emittierten Haupt-Gamma-Linien haben Energien bei 570 und 1064 keV. Diese kann mit Prompt-Gamma-Linien von Elementen interferieren, die mit thermischen Neutronen aktiviert wurden. Eine Separation der Aktivitäten begünstigt die Nachweisempfindlichkeit für die verschiedenen Elemente. In Abbildung 13 ist die zyklische Neutronen-Aktivierung schematisch dargestellt.



**Abbildung 13:** Schematische Darstellung der zyklischen Neutronen-Aktivierung. In dem eingezeichneten Messintervall, können sowohl Prompt-Gammas, die durch Aktivierung mit thermischen Neutronen erzeugt wurden, als auch verzögerte Gammas von Radionukliden, die durch thermische bzw. schnelle Neutronen erzeugt wurden, nachgewiesen werden. Bei der Abbildung wurde außerachtgelassen, dass sich das thermische Neutronenfeld über 10 – 15 Pulse stufenweise aufbaut. Im Verhältnis zu den 1000 Pulsen pro Sekunde im Standardbetrieb können die ersten Pulse vernachlässigt werden.

Wie im oberen Abschnitt beschrieben, wird die zyklische Aktivierung in vier Fälle unterteilt. Bei der folgenden Betrachtung wird davon ausgegangen, dass die Probe und die Neutronenquelle von einer großen Menge an Graphit umgeben sind. Eine Graphitkammer ist auch zentraler Bestandteil des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten PGNA-Prototypsystems.

#### 1. Prompte-Gamma-Aktivierung mit schnellen Neutronen – Aktivität $A_{p,f}$

Die Prompt-Gammas, die nach den in Abschnitt 3.1 beschriebenen Kernreaktionen entstehen können, werden im Detektor direkt während des Neutronenpulses gemessen:

$$P_{p,f} = N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \varepsilon \cdot n \cdot t_p \quad (5.2)$$

Hierbei entspricht  $N$  der Anzahl der Atomkerne,  $\sigma_f^z$  dem Wirkungsquerschnitt für die Photonenproduktion mit schnellen Neutronen,  $\phi_f$  dem schnellen Neutronenfluss,  $\varepsilon$  der Photopeak-Effizienz,  $n$  der Anzahl der Pulse und  $t_p$  der Mess- bzw. Pulszeit. Der Wirkungsquerschnitt für die Photonenproduktion ( $\sigma_f^z = \sigma_c \cdot I_\gamma \cdot h_z$ ) ist das Produkt aus dem Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang  $\sigma_c$ , der Gamma-Emissionswahrscheinlichkeit  $I_\gamma$  und der Isotopenhäufigkeit  $h_z$ .

Die oben erwähnte Problematik, dass aufgrund der hohen Empfindlichkeit des Spektrometers die Messung während des Pulses kaum möglich war, hängt größtenteils mit der hohen Effizienz des Detektors zusammen. Lösungsvorschläge zur Behebung dieses Problems werden in Kapitel 7 diskutiert.

## 2. Prompte-Gamma-Aktivierung mit thermischen Neutronen – Aktivität $A_{p,th}$

Im Falle der Aktivierung mit thermischen Neutronen verhält sich die Detektor-Response (Anzahl an gemessenen Impulsen) ähnlich wie im ersten Fall. Der Unterschied liegt in der Lage des Zeitfensters  $t_c$ , das nun zwischen den Pulsen liegt:

$$P_{p,th} = N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \varepsilon \cdot n \cdot t_c \quad (5.3)$$

## 3. Verzögerte-Gamma-Aktivierung mit schnellen Neutronen – Aktivität $A_{d,f}$

Um die kumulative Detektor-Response der verzögerten Gammas zu bestimmen ist eine genaue Betrachtung der Aktivierung notwendig [Givens1970]. Sowohl die Pulslänge  $t_p$  als auch die Wartezeit  $t_w$ , nach der das Messintervall startet, hängen von den zu bestrahlenden Proben ab. Die Aktivitäten und Halbwertszeiten hängen von den jeweiligen Isotopen ab.

Nach dem ersten Puls stellt sich die Aktivität wie folgt dar:

$$A_1 = N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_p}\right) \cdot e^{-\lambda_t \cdot t_w} \quad (5.4)$$

Hierbei ist  $\lambda_t$  die Zerfallskonstante für das jeweilige Isotop.

Für die Detektor-Response ergibt sich dadurch nach der ersten Zählperiode  $T$ :

$$P_1 = A_1 \cdot \varepsilon \cdot \int_0^{t_c} e^{-\lambda_t \cdot t} dt = \frac{N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \varepsilon}{\lambda_t} \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_p}\right) \cdot \left(e^{-\lambda_t \cdot t_w}\right) \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_c}\right) \quad (5.5)$$

Die Impulse der folgenden Perioden können aufaddiert werden und führen zu kumulierten Detektor-Response  $P_{d,f}$ . Die Herleitung der folgenden Gleichung befindet sich im Anhang A1:

$$P_{d,f} = \frac{N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \varepsilon}{\lambda_t} \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_p}\right) \cdot \left(e^{-\lambda_t \cdot t_w}\right) \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_c}\right) \cdot \left[ \frac{n}{1 - e^{-\lambda_t \cdot T}} - \frac{e^{-\lambda_t \cdot T} \cdot \left(1 - e^{-n \cdot \lambda_t \cdot T}\right)}{\left(1 - e^{-\lambda_t \cdot T}\right)^2} \right] \quad (5.6)$$

## 4. Verzögerte-Gamma-Aktivierung mit thermischen Neutronen – Aktivität $A_{d,th}$

Bei der Messung der verzögerten Gammas wird angenommen, dass sich aufgrund der relativ kurzen Thermalisierung der schnellen Neutronen (in Graphit 0,88 ms), der langen Lebensdauer der thermischen Neutronen (in Graphit 16,77 ms) und der hohen Repetitionsrate der Neutronenpulse ein kontinuierliches Neutronenfeld eingestellt hat. Für die Detektor-Response hat das zur Folge, dass während des radioaktiven Zerfalls eine erneute Aktivierung stattfindet und sich so nach kurzer Zeit ein Gleichgewicht einstellt. In diesem Fall beträgt die Aktivität nach dem ersten Puls:

$$A_1 = N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot (t_p + t_w)}\right) \quad (5.7)$$

Daraus ergibt sich für die Detektor-Response:

$$\begin{aligned}
 P_1 &= A_1 \cdot \varepsilon \cdot \int_0^{t_c} e^{-\lambda_t \cdot t} + (1 - e^{-\lambda_t \cdot t}) dt \\
 &= N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \varepsilon \cdot \left[ \left( 1 - e^{-\lambda_t (t_p + t_w)} \right) \cdot \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t} + t_c \left( 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t \cdot t_c} \right) \right]
 \end{aligned} \tag{5.8}$$

Auch in diesem Fall lassen sich die Impulse der Einzelperioden aufaddieren und zu einer kumulierten Detektor-Response  $P_{d,th}$  zusammenführen (siehe Anhang A1):

$$P_{d,th} = N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \varepsilon \cdot \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t} \cdot \left( n - e^{-\lambda_t (t_p + t_w)} \cdot \frac{1 - e^{-\lambda_t n \cdot T}}{1 - e^{-\lambda_t T}} \right) + n \cdot t_c \cdot \left( 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t \cdot t_c} \right) \right] \tag{5.9}$$

Es ist auch möglich die Pulsperiode  $T$  der Neutronenpulse soweit zu erhöhen, dass auch das thermische Neutronenfeld abgeklungen ist. In der anschließenden Messung werden dann nur noch die verzögerten Aktivitäten mit thermischen Neutronen detektiert. Die Detektor-Response  $P_{d,th,lang}$  ähnelt in diesem Fall der verzögerten Gamma-Aktivierung mit schnellen Neutronen:

$$P_{d,th,lang} = \frac{N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \varepsilon}{\lambda_t} \cdot \left( 1 - e^{-\lambda_t t_{p'}} \right) \cdot \left( e^{-\lambda_t t_w} \right) \cdot \left( 1 - e^{-\lambda_t t_c} \right) \cdot \left[ \frac{n}{1 - e^{-\lambda_t T}} - \frac{e^{-\lambda_t T} \cdot (1 - e^{-n \cdot \lambda_t T})}{(1 - e^{-\lambda_t T})^2} \right] \tag{5.10}$$

Hierbei müssen bei der Wartezeit  $t_w$  und der Lebensdauer  $t_{p'}$  der thermischen Neutronen die Moderationseigenschaften der Graphitkammer und der Probe berücksichtigt werden.





# Kapitel 6

## Simulation mit MCNP

### Zusammenfassung

Die Anfänge der Entwicklung des Monte-Carlo-Nuclear-Particle-Codes (MCNP) reichen bis in die 40er Jahre des letzten Jahrhunderts zurück [Han2005]. Die Wissenschaftler des militärischen Manhattan-Projektes um Fermi, von Neumann, Ulam, Richtmyer und Metropolis legten die Grundlagen für den Code. Mit der Weiterentwicklung ergaben sich immer neue Anwendungen für den Einsatz von MCNP. Heutzutage wird der Computer-Code für die Simulation von einer Vielzahl unterschiedlicher Teilchentransportproblemen eingesetzt, angefangen in der Kerntechnik bis hin zur Nuklearmedizin. Dieses Kapitel gibt einen kurzen Einblick in den Aufbau und die Funktionsweise von MCNP. Darüber hinaus wird das MCNP-Modell des PGNAA-Prototypsystems beschrieben.

### 6.1. Der Computer-Code MCNP – Monte-Carlo-Verfahren

Die Abkürzung MCNP steht für „*Monte-Carlo<sup>21</sup>-Nuclear-Particle Transport Code*“. Der Computer Code behandelt sowohl den Neutronen- und Photonentransport, als auch den gekoppelten Transport, bei dem sekundäre Photonen infolge von Neutroneninteraktionen entstehen können. Darüber hinaus wird auch der Transport von primären und sekundären Elektronen mit berücksichtigt [X-5Team2005].

Der Code ist eine Entwicklung des Los Alamos National Laboratory (LANL) in New Mexiko (Vereinigte Staaten von Amerika). In der vorliegenden Arbeit wurde die Version MCNP5 1.40 verwendet.

Die Monte-Carlo-Verfahren basieren auf Algorithmen, die sich der Stochastik bedienen. Man spricht in diesem Zusammenhang von randomisierten Algorithmen, die auf Zufallszahlen<sup>22</sup> basieren. Im Gegensatz zu deterministischen Rechenmethoden können die Ergebnisse bei dem Monte-Carlo-Verfahren „falsch“ sein. Durch ein Wiederholen der Rechnungen mit unabhängigen Zufallszahlen kann die Fehlerwahrscheinlichkeit reduziert werden. Im Fall von MCNP werden viele Historien des Neutronen- und Photonentransportes betrachtet und dann aufaddiert. In Abbildung 14 ist zur Veranschaulichung eine mögliche Reaktionskette eines einfallenden Neutrons in ein spaltbares Material dargestellt.

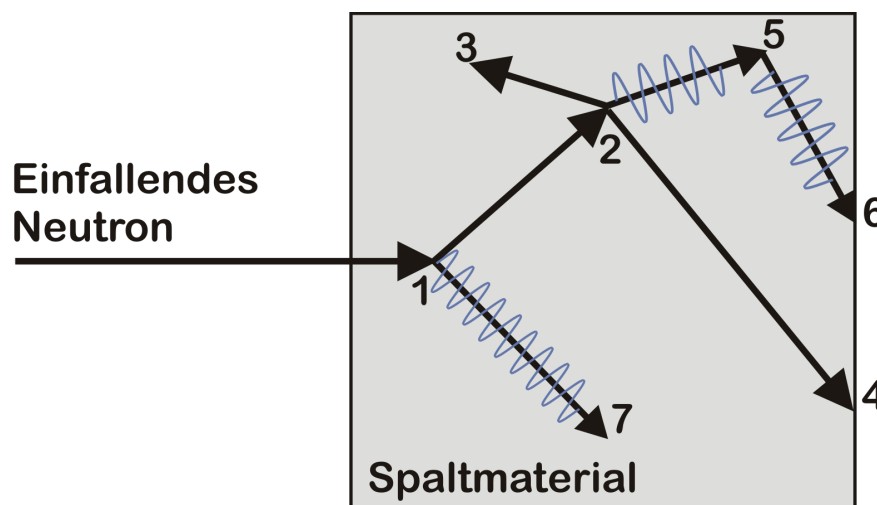


Abbildung 14: Beispiel für eine Reaktionskette, wie sie mit MCNP berechnet werden kann.

Das einfallende Neutron wird an Position 1 gestreut und gibt dabei einen Teil seiner Energie in Form eines Photons ab. Dieses Photon wird in Position 7 vollständig vom Spaltmaterial absorbiert. Das gestreute Neutron wird hingegen an Position 2 von einem Kern eingefangen und führt zu dessen Spaltung. Infolge der Spaltung entstehen zwei neue Neutronen und ein Photon, wovon ein Neutron

<sup>21</sup> Der Name leitet sich vom monegassischen Stadtteil Monte Carlo ab, der durch seine Spielbank berühmt wurde.

<sup>22</sup> MCNP benutzt keine echten Zufallszahlen, sondern berechnet „Zufallszahlen“ nach einem speziellen Algorithmus.

das Spaltmaterial ohne weitere Wechselwirkung in Position 4 verlässt. Das Photon wird in Position 5 zunächst gestreut und verlässt dann ebenfalls ohne weitere Wechselwirkung das Spaltmaterial in Position 6. Für jede Wechselwirkung in dieser Reaktionskette berechnet MCNP die Wahrscheinlichkeit. Dabei nutzt es Datenbanken mit Wirkungsquerschnitten für die verschiedenen möglichen Wechselwirkungen.

## 6.2. Nukleare Daten- und Wirkungsquerschnittbibliotheken

Die grundlegenden Quellen für die MCNP-Bibliothek sind verschiedene nukleare und atomare Datentabellen. Hier sind in erster Linie die amerikanischen Datenbanken „Evaluated Nuclear Data File“ (ENDF), „Evaluated Nuclear Data Library“ (ENDL), die japanische Datenbank „Japanese Evaluated Nuclear Data Library“ (JENDL) und die europäische Datenbank „Joint Evaluated Fission and Fusion File“ (JEFF) zu nennen. Diese Datenbanken enthalten Informationen über Neutronen- bzw. Photonenwechselwirkungen, Neutronendosimetrie, Neutronen-Aktivierung, usw. Diese Daten liegen für MCNP im „A Compact ENDF“-Format (ACE) vor. Die Umwandlung der Daten erfolgt mit dem Programm NJOY.

Jede einzelne Datenbank kann über die Datei „XSDIR“ in MCNP eingepflegt werden. Dazu wird jedes Isotop mit der ZAID-Nummer identifiziert, wobei Z die Ordnungszahl, A die Massenzahl und ID die Datenbanknummer (*Identification*) kennzeichnet [Shultis2006, S. 8].

## 6.3. Aufbau der MCNP-Input-Datei

Für die Simulation mit MCNP werden die Informationen über die Geometrie, die Materialeigenschaften, die Quelldefinition und die Problembeschreibung in einer sogenannten „Input“-Datei definiert. Der Aufbau dieser Datei erinnert an die Hollerith-Lochkarten-Struktur<sup>23</sup>. Die Input-Datei ist im Wesentlichen in 3 Blöcke unterteilt. Der erste Block beschreibt die Geometrie, der Zweite die Materialeigenschaften und der dritte Block die Aufgabenstellung mitsamt der Quelldefinition für die Primärteilchen. Die Spalten dürfen wie bei dem Hollerith-Lochkartenverfahren nicht länger als 80 Zeichen lang sein. Steht ein „c“ am Anfang einer Zeile, werden die folgenden Zeichen als Kommentare interpretiert. Es können auch Kommentare beliebig hinter einem „\$“ gesetzt werden.

### 6.3.1. Geometriedefinition des MCNP-Modells

Die Geometrie in MCNP wird durch Raumzellen definiert. Diese werden durch Zellnummern, Materialnummern, Materialdichten und einer Liste verschiedener Oberflächen festgelegt. MCNP bietet die Möglichkeit durch verschiedene Arten von Oberflächendefinitionen (*Surfaces*), z. B. Ebenen, Zylindern, Kugeln, usw. die Zelldefinition zu vereinfachen. Es befinden sich zurzeit Programme in Entwicklung, die es ermöglichen, CAD-Modelle in MCNP-Geometrien zu überführen. MCNP nutzt ein 3-dimensionales (x, y und z) kartesisches Koordinatensystem, wobei alle Dimensionen in Zentimeter [cm] angegeben werden.

---

<sup>23</sup> Aus der von Herman Hollerith gegründeten Firma „Tabulating Machine Company“ ging 1924 die „International Business Machines Corporation“ (IBM) hervor.

Die Oberflächen sind grundlegend für die Definition der verschiedenen Zellen. Zur Vereinfachung sind einige Oberflächenfunktionen vordefiniert. Beispielsweise ist für einen Zylinder mit Radius  $R$  parallel zur Z-Achse die Funktion:  $f(x, y, z) = (x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2 - R^2$ . In MCNP wird für diese Oberflächenfunktion durch die Abkürzung C/Z definiert, die zugehörige Zeile in der Input-Datei könnte wie folgt aussehen:

```
1      C/Z      5 5 10
```

Dabei kennzeichnet die erste Zahl die Oberflächennummer. Bei C/Z handelt es sich um eine unendlich lange Zylinderoberfläche parallel zur Z-Achse mit dem Radius 10 cm, wobei die Achse durch den Punkt  $x = 5$  cm,  $y = 5$  cm und  $z = 0$  cm geht.

Eine Vielzahl an vordefinierten Oberflächenfunktionen lassen sich im Manual von MCNP finden [X-5Team2005, S. 3-16].

Bei der Definition der Zellen wird auf die Oberflächen- und Materialdefinition zurückgegriffen. Anhand eines Kubus gefüllt mit Wasser soll dies verdeutlicht werden:

```
1      1      -0.99997      100 -101 200 -201 300 -301      $Wasserdichte bei 4 °C
```

Die erste Zahl gibt die Identifikationsnummer für die Zelle an, ihr folgt die Materialnummer. An dritter Stelle wird die Dichte [ $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ] definiert, ist diese Zahl positiv so handelt es sich um die atomare Dichte [ $10^{24}$  Atome $\cdot\text{cm}^{-3}$ ]. Die letzten sechs Zahlen legen die Oberflächen des Kubus fest. Befindet sich innerhalb der Zelle eine weitere Zelle, die andere Eigenschaften besitzt, so kann diese durch den Zusatz „#“ und die zugehörige Zellnummer aus der Definition der neuen Zelle ausgeschlossen werden.

Es gibt, wie im Fall der Oberflächen, Abkürzungen zur Definition von oft benötigten Zelltypen wie Boxen oder Zylindern. Darüber hinaus ist es möglich eine Gewichtung für die jeweiligen Transportprobleme (Photonen- bzw. Neutronentransport) einzuführen.

### 6.3.2. Die Materialdefinition der MCNP-Geometrie

Für die Definition der Materialien, die den einzelnen Zellen zugeordnet werden, wird auf die oben erwähnten Datenbanken zurückgegriffen. Es ist möglich, das Element- bzw. Isotopenverhältnis in Abhängigkeit von der Masse oder der Anzahl der Atome anzugeben. Die Materialdefinitionen unterscheiden sich dabei unwesentlich, wie das folgende Beispiel von Wasser zeigt:

```
c =====
c WASSER für den Neutronentransport (In Abhängigkeit vom Massenverhältnis)
c (H-2, O-17 und O-18 werden vernachlässigt)
c =====
M1      1001.66c      -0.11190      $ H-1  Massenanteil
      8016.66c      -0.88810      $ O-16  Massenanteil

c =====
c WASSER für den Neutronentransport (In Abhängigkeit vom Atomverhältnis)
c (H-2, O-17 und O-18 werden vernachlässigt)
c =====
M1      1001.66c      2      $ H-1  Atomanteil
      8016.66c      1      $ O-16  Atomanteil
```

M1 ist die Identifikationsbezeichnung für das Material, die beiden Zahlen 1001.66c und 8016.66c beziehen sich auf die Ordnungs- und Massenzahl gemäß der ZAID-Kodierung. Wird das Isotopenverhältnis in Abhängigkeit von der Masse angegeben, so wird ein Minus vor die Zahl gestellt, ansonsten wird die Anzahl der Atome pro Molekül angegeben.

Darüber hinaus gibt es noch die Möglichkeit spezielle Optionen zu verwenden, z. B. um Bindungseffekte zu berücksichtigen, die zu Energieverlusten bei Kollisionen von langsamen Neutronen führen.

### 6.3.3. Definition der Primärteilchenquelle

MCNP bietet die Möglichkeit viele verschiedene Quellentypen der Primärteilchen, seien es Neutronen oder Photonen, zu definieren. Für natürliche Radioquellen wie  $^{252}\text{Cf}$  kann unter Verwendung der implementierten WATT-Formel<sup>24</sup> und den zugehörigen Parametern ( $a = 1,025$  und  $b = 2,926$ ), ein kontinuierliches Neutronenspektrum definiert werden [X-5Team2005, S. 3-64].

Für die Simulationen einer monoenergetischen Neutronenquelle wie dem in der Arbeit verwendeten (D-T)-Neutronengenerator sieht die Definition wie folgt aus:

```
c =====Quellendefinition=====
sdef ERG=14.1 POS=0 -25 0 RAD=d1 PAR=1
si1    0      2.8
sp1    -21    1
nps    1e9
```

Die Abkürzung „ERG“ steht für die Neutronenenergie, in diesem Fall 14,1 MeV. Durch die Eingabe „POS“ wird die Position der Neutronenquelle im kartesischen Koordinatensystem (x, y und z) festgelegt. Mit „RAD“ können zusätzliche Angaben (si1 und sp1) zur Dimension der Neutronenquelle gemacht werden. Die Angabe „si1“ gibt den Radius der Neutronenquelle an, der von 0 bis 2,8 cm reicht. Die Abkürzung „sp1“ stellt eine Gewichtung der scheibenförmigen Neutronenquelle dar. In diesem Fall nimmt die Emission der Neutronen linear mit dem Radius ab (durch die 1 symbolisiert). Mit der letzten Angabe „PAR“ wird der Typ der Primärteilchen definiert; 1 steht für Neutronen, 2 für Photonen und 3 für Elektronen.

Die Angabe der Quellstärke spielt an dieser Stelle noch keine Rolle, weil MCNP alle Ergebnisse auf ein Quellteilchen normiert. Es ist aber notwendig, eine Abbruchbedingung am Ende der Input-Datei festzulegen. Mit der Angabe „nps“ (*number of particle source*) wird die Anzahl der zu berechnenden Historien definiert. Ein Abbruch der Berechnung nach einer vorgegebenen Zeit ist auch möglich.

### 6.3.4. Aufgabenstellung für die Simulation – Definition der Tally

Nachdem die Geometrie und alle dazugehörigen Angaben definiert wurden, können die eigentlichen Aufgabenstellungen definiert werden. In MCNP werden diese „Tallies“ genannt und sind in 11 Kategorien eingeteilt [Shultis2006, S. 16]. Für die Berechnung des mittleren Neutronenflusses durch eine beliebige Oberfläche bzw. Zelle werden die Tallies F2 und F4 benutzt. Im Rahmen dieser Arbeit war die Berechnung der Energiedeposition im Detektorkristall von besonderer Bedeutung und konnte

<sup>24</sup> Die Formel beschreibt die Spontanspaltung von Radionukliden:  $f(E) = C \cdot \exp(-E/a) \cdot \sinh(b \cdot E)^{1/2}$

durch das sogenannte „*pulse height*“ oder F8-Tally berechnete werden. Dabei werden auch die Energien der Sekundärteilchen mitberechnet. Dieses Tally spielt eine Sonderrolle bei MCNP, weil die mikroskopischen Ereignisse mit einer noch höheren Genauigkeit berücksichtigt werden, als es sonst schon üblich ist. Es ist nicht ungewöhnlich, dass die Energieerhaltung von Sekundärteilchen bei Neutronenkollisionen vernachlässigt wird, sofern es nicht für die Aufgabenstellung relevant ist. Bei der Berechnung des F8-Tally würde dies zu falschen Ergebnissen führen [X-5Team2005, S. 3-86].

Das folgende Beispiel zeigt die Definition eines F8-Tally:

```
c =====Photonendeposition im Detektorkristall=====
e28    0.0 1e-11 2e-11 16384i 12
f28:p  5
f28    GEB 0.0007543 0.0009905 1.31927          $Koeffizienten für einen 100 % HPGe
```

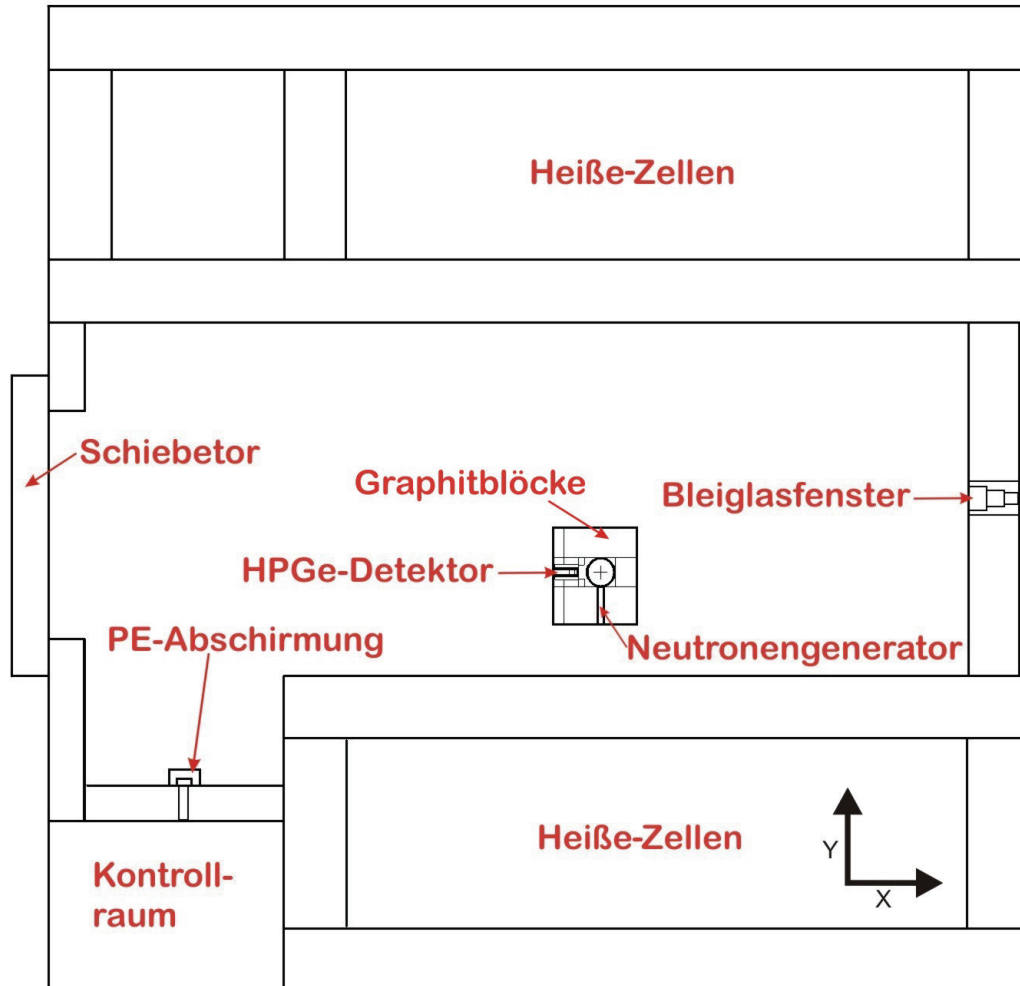
Zuerst werden die Energieintervalle „e“ definiert, in denen die Photonenenergien einsortiert werden. Die erste Zahl „2“ gibt die Tally-Nummer an und die zweite Zahl „8“ legt den Tally-Typ fest. Die ersten beiden Intervalle von 0 bis 1e-11 MeV und 1e-11 bis 2e-11 MeV dienen als Puffer für „*Knock-on*“ Elektronen (Elektronen, die von Atomen infolge passierender geladener Teilchen emittiert werden) und Teilchen, die die Zelle zwar passieren, aber keine Energie in ihr deponieren. Der Energiebereich zwischen 2e-11 und 12 MeV wird in 16384 Intervalle<sup>25</sup>, mit 0,73 keV pro Intervall, eingeteilt. Die Angaben in der nächsten Zeile legen fest, dass in Zelle „5“ nur Photonen „p“ detektiert werden sollen. Die letzte Zeile ist notwendig, wenn die simulierten Daten mit Messergebnissen eines physikalischen Detektors verglichen werden sollen. Das Verfahren nennt sich „*Gaussian Energy Broadening*“ (GEB) und berücksichtigt, dass die Energie in einem Spektroskopiesystem mit einer endlichen Halbwertbreite (FWHM) registriert wird.

#### 6.4. Das MCNP-Modell der PGNAA-Anlage

Die Entwicklung des MCNP-Modells für das PGNAA-Prototypsystem begann vor dem Aufbau des Experimentes. In einer Vorstudie wurden verschiedene Konstellationen der Neutronengenerator- und Detektorposition simuliert. Dazu wurde auch die komplette Experimentierhalle mit den angrenzenden Laboratorien in MCNP nachgebildet. In Abbildung 15 ist das Modell aus der Sicht von oben dargestellt. Details wie das Bleiglasfenster zum umlaufenden Gang und die Kabelführung in den Kontrollraum sind ebenfalls berücksichtigt worden. Die Wände mit einer Dicke von 50 – 85 cm sind den realen Abmessungen nachempfunden worden. Das Modell des PGNAA-Prototypsystems wurde nach den Spezifikationen der physikalischen Komponenten, wie Detektor, Neutronengenerator und Graphitkammer entwickelt. Der Detektor, ohne Dewar-Gefäß, wurde nach den Angaben des Herstellers modelliert. Der Detektorkristall hat sowohl eine Länge, als auch einen Durchmesser von 8 cm und bestand zu 100 % aus natürlichem Germanium. Die Neutronenabschirmung wurde nach ihrer Fertigstellung in den Simulationen auch berücksichtigt. Der Neutronengenerator wurde als ein Aluminiumrohr mit einem scheibenförmigen Target angenommen. Die Quelle wurde wie im obigen Beispiel dargestellt definiert. Die Probengrößen und deren Zusammensetzungen, sowie die

<sup>25</sup> 16384 entsprechen  $14 \text{ bit} = 2^{14}$ . Dieser Zahlenwert ist mit der Anzahl der Kanäle des verwendeten Vielkanalanalysators identisch.

Abmessungen des Stahlfasses wurden später den experimentellen Dimensionen nachempfunden. In Anhang A2 ist die „Input“-Datei für das MCNP-Modell der PGNAA-Anlage dargestellt.



**Abbildung 15:** Das MCNP-Modell der Experimentierhalle wurde nach den Bauplänen der Chemiezellen angefertigt. Der Abstand vom Schiebetor bis zum Bleiglasfenster entspricht 12,5 m und die Entfernung zwischen den Heißen-Zellen ist 4,8 m lang. Vom Fundament der Halle (85 cm dick) bis zur Decke sind es 6 m. Das PGNAA-Prototypsystem hat eine Dimension von  $1,15 \times 1,3 \times 0,8 \text{ m}^3$ .

Das MCNP-Modell der Experimentierhalle wurde nur für Simulationen der Dosisleistungsberechnungen in den umliegenden Räumen und die optimale Position der Neutronenquelle benutzt. Da die Rechenzeit für den Neutronen- und Photonentransport unter anderem von der Größe des Modells abhängen, wurden alle weiteren Simulationen auf das Modell des PGNAA-Prototypsystems beschränkt.



Bei allen Simulationen wurden mindestens  $10^9$  Primärteilchenhistorien gerechnet, um eine angemessene Statistik zu gewährleisten. Desweiteren führt MCNP bei jeder Simulation 10 statistische Tests durch, um die Qualität der Berechnung zu beurteilen [Shultis2006, S. 34ff]. Zentrale Größen dieser Tests sind z. B. der Relativ-Fehler und die Varianz der Varianz (VOV<sup>26</sup>). Der Relativ-Fehler jedes Tallys muss einen Wert von unter 0,1 besitzen und mit  $1/\sqrt{N}$  für die letzte Hälfte der Ergebnisse<sup>27</sup> der Aufgabenstellung abnehmen, wobei N die Anzahl der berechneten Teilchenhistorien ist. Ähnlich verhält es sich für die VOV, die am Ende jeder Simulation einen Wert kleiner als 0,1 haben muss und mit  $1/N$  für die letzte Hälfte der Ergebnisse der Aufgabenstellung abnehmen soll.

Alle im Rahmen dieser Arbeit mit MCNP durchgeführten Simulationen erfüllten die statistischen Tests.

---

<sup>26</sup> VOV kann als die Genauigkeit des Relativ-Fehlers verstanden werden. Sie beinhaltet das dritte und vierte Moment der Tally-Distribution und reagiert sehr viel genauer auf Fluktuationen bei großen Berechnungen.

<sup>27</sup> MCNP macht bei jeder Simulation Zwischenberechnungen und überprüft so, wie sich z. B. der Relativ-Fehler oder die VOV entwickeln.

# Kapitel 7

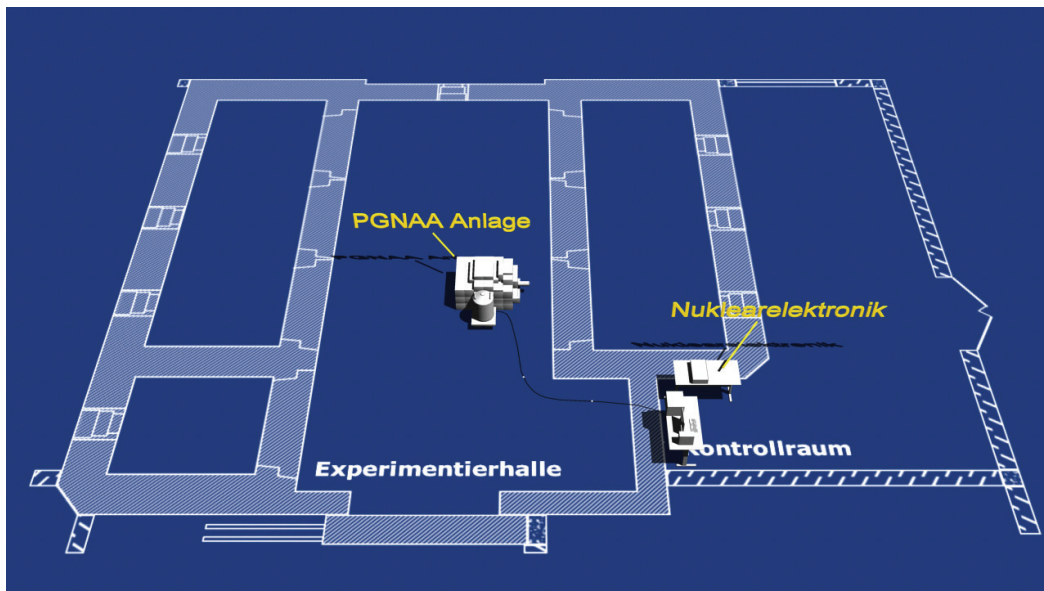
## Instrumenteller Aufbau und Testmessungen

### Zusammenfassung

Der Aufbau und die Kalibrierung des PGNAA-Prototypsystems setzen sowohl sicherheitstechnische Strahlenschutzmaßnahmen, als auch besondere Anforderungen an die Beschaffenheit der Systemkomponenten voraus. Es wurden die Ortsdosisleistung und die Personen-Tiefendosis an verschiedenen Stellen in und um die Experimentierhalle gemessen und mit MCNP berechnet. Der relativ hohe Neutronenfluss im Bereich des Detektors führt zu einer Aktivierung des Germanium-Kristalls und musste minimiert werden. In diesem Kapitel wird auch der Bau einer geeigneten Neutronenabschirmung beschrieben, ebenso wie weitere Maßnahmen beschrieben, um die Einstellungen des Spektrometers mit der Quellstärke des Neutronengenerators abzustimmen.

## 7.1. Die Experimentierhalle und der Kontrollraum

Das PGNAA-Prototypsystem für die Charakterisierung von 25 bzw. 50 l Proben-Fässern wurde in der Beschickungszone der Chemiezellen (CZ) des Forschungszentrums Jülich aufgebaut. In der Vergangenheit wurden in den angrenzenden Laboratorien etliche Projekte zur Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen durchgeführt. Die Experimente mit den Brennelementen fanden in den sogenannten „heißen Zellen“ statt, die über die Beschickungszone mit geringen Mengen der Kernbrennstoffe beladen wurden. Zum Zeitpunkt des PGNAA-Experimentes wurden keine Untersuchungen von Kernbrennstoffen in den angrenzenden Heißen-Zellen durchgeführt, sodass die Beschickungszone einzig und allein als Experimentierhalle genutzt werden konnte. In Abbildung 16 ist der schematische Grundriss der Experimentierhalle mit den angrenzenden Räumen dargestellt. Die Halle zeichnet sich dadurch aus, dass sie nach allen Seiten von mindestens 50 cm Barytbeton<sup>28</sup> umgeben ist, im Bereich der Heißen-Zellen sind es sogar 85 cm. Der Barytbeton hat eine Dichte von  $3,53 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

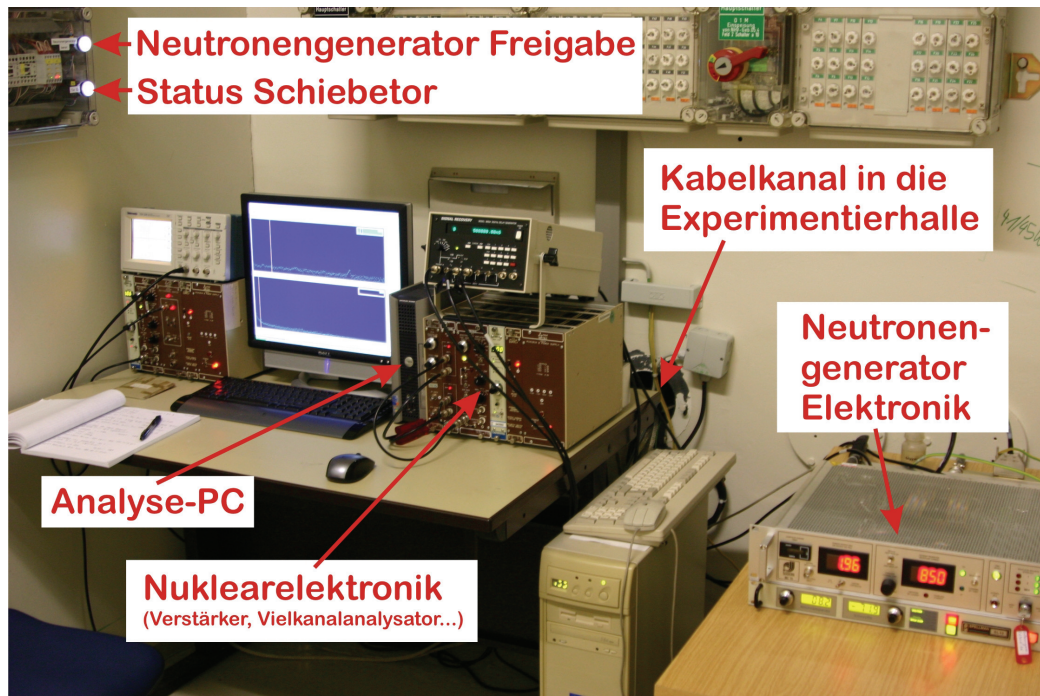


**Abbildung 16:** Die Experimentierhalle kann nur über ein massives Schiebetor betreten werden (in der Abb. unter dem Schriftzug „Experimentierhalle“ zu erkennen). Es hat eine Länge von 7 m und besitzt eine Wandstärke von 50 cm. Auf der gegenüberliegenden Seite zum Schiebetor befindet sich ein Bleiglasfenster, über das die Experimentierhalle von außen einsehbar ist. Die Steuer- und Signalkabel der PGNAA-Anlage verlaufen über ein Labyrinth aus Polyethylen und Blei in den Kontrollraum. [Bildquelle: WipplerTec2009]

Als Kontrollraum für das PGNAA-Prototypsystem kam nur ein angrenzendes Laboratorium infrage, da die Steuer- und Signalkabel nicht beliebig lang sein durften. Das Hochspannungskabel zwischen der Steuerelektronik und dem Neutronenrohr ist mit 15 m Länge die limitierende Größe. Im Kontrollraum befand sich auch der Schaltkasten für das Interlocksystem, das die Anwesenheit von

<sup>28</sup> Bei Barytbeton handelt es sich um Schwerbeton, dessen Dichte von 2,8 bis  $4,5 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  reicht. Die Gesteinskörnung ist Baryt bzw. Schwerspat ( $\text{BaSO}_4$ ).

Personal in der Experimentierhalle während des Betriebs der Anlage ausschließen sollte. Desweiteren befanden sich in der Experimentierhalle ein Tastschalter, ein Notausschalter und eine Signallampe, die den Betrieb der Anlage anzeigte. In Abbildung 17 ist ein Foto des Kontrollraums und der Elektronik gezeigt.



**Abbildung 17:** Das Interlocksystem ist nur teilweise oben links auf dem Foto zu erkennen. Sobald die beiden Kontrolllampen vom Neutronengenerator und dem Schiebeter aufleuchten, ist das System betriebsbereit. Die Elektronik vom Neutronengenerator ist nochmal zusätzlich mit einem Schlüsselschalter gesichert.

Bevor eine Messung durchgeführt werden konnte, musste neben der Nuklearelektronik auch die Elektronik für den Neutronengenerator betriebsbereit sein. Dazu musste die Freigabe vom Interlocksystem gegeben sein. Für die Freigabe war es notwendig sich in die Experimentierhalle zu begeben und dort den Tastschalter neben dem Bleiglasfenster zu betätigen. Dadurch wurde ein Zeitfenster von 5 min gestartet. Diese Zeit war lang genug, um sicherzustellen, dass sich niemand mehr in der Halle befindet und um das Schiebeter zu verschließen. Damit das Schiebeter zugefahren werden konnte, musste eine Drucktaste direkt vor dem Tor dauerhaft betätigt werden. Sobald das Schiebeter geschlossen war, wurde von dem Interlocksysteem eine Freigabe an die Steuerung des Neutronengenerators erteilt. In der Experimentierhalle leuchtete zur selben Zeit die Signallampe auf. Dadurch ist es im unwahrscheinlichen Fall, dass sich noch Personen in der Halle befinden, möglich, über den Notausschalter die Anlage außer Betrieb zu setzen.

### 7.1.1. Genehmigung für den Betrieb des Neutronengenerators

Für die Inbetriebnahme des Neutronengenerators war eine Genehmigung gemäß §11 der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) von der Bezirksregierung in Köln notwendig. In der Genehmigung wurde neben dem Nachweis des Erwerbes, der für den Strahlenschutz erforderlichen Fachkunde, auch die Angaben zur erwarteten Luft- und Bodenaktivierung gefordert. Die Berechnungen der Aktivierungen erfolgten auf der Basis eines (D-T)-Neutronengenerators mit einer Quellstärke von  $10^{10} \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$ .

Bei der Luftaktivierung ist  $^{41}\text{Ar}$  als kritisches Radionuklid anzusehen. Der thermische Neutronenfluss an der Oberfläche der Graphitkammer wurde mit  $300 \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  abgeschätzt, daraus wurde eine mittlere  $^{41}\text{Ar}$ -Aktivitätskonzentration in der Raumluft der Experimentierhalle von  $0,6 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  berechnet. Da die Raumluft fünfmal pro Stunde ausgetauscht wird und der Abluftvolumenstrom  $45000 \text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$  beträgt, ergibt sich eine Aktivitätskonzentration an  $^{41}\text{Ar}$  in der Abluft der Chemiezellen von  $0,06 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Laut Tabelle 5 Spalte 2 der StrlSchV beträgt der Grenzwert für die Freisetzung von  $^{41}\text{Ar}$  aus Strahlenschutzbereichen  $200 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Dieser Wert wird bei dem Betrieb der PGNA-Anlage weit unterschritten.

Die Berechnung der Aktivierung des Grundwassers ist etwas komplizierter. Die Dicke der Bodenplatte der Experimentierhalle wurde mit  $0,7 \text{ m}$  abgeschätzt und die Position des unabgeschirmten Neutronengenerators wurde bei einer Höhe von  $0,5 \text{ m}$  über dem Fußboden festgelegt. Der nach diesen Angaben mit MCNP berechnete thermische Neutronenfluss an der Grenzfläche zum Erdreich beträgt  $250 \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ . Zur Berechnung der Aktivierung des Grundwassers wurde davon ausgegangen, dass das Erdreich auf einer Grundfläche von  $2 \times 2 \text{ m}$  unter der Position des Neutronengenerators bis zu einer Tiefe von  $0,5 \text{ m}$  mit dem von MCNP berechneten Neutronenfluss gleichmäßig bestrahlt wird. Die unterstellte Elementzusammensetzung des Grundwassers ist in Tabelle 2 angegeben.

**Tabelle 2:** Unterstellte Elementzusammensetzung des Grundwassers.

Element	Na	K	Mg	Ca	Cl	S	C
Konzentration [ $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ ]	14,2	1,9	13,8	87,7	12	2	69

Es wurde von einem Grundwassergehalt des Erdreichs von  $20 \text{ Vol.}\%$  ausgegangen. Als kritische Nuklide ergeben sich  $^{24}\text{Na}$  und  $^{38}\text{Cl}$ . Unter der angegebenen Bestrahlungsbedingung wird in dem bestrahlten Volumen des Grundwassers von  $0,4 \text{ m}^3$  eine  $^{24}\text{Na}$  Aktivität von  $12 \text{ Bq}$  und eine  $^{38}\text{Cl}$  Aktivität von  $1,5 \text{ Bq}$  erzeugt. Die entsprechenden Aktivitätskonzentrationen betragen  $30 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  bzw.  $4 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Laut Tabelle 6 Spalte 4 der StrlSchV dürfen aus Strahlenschutzbereichen, Wasser mit einer maximalen Aktivitätskonzentration von  $10^3 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  für beliebige Aktivitätsgemische freigesetzt werden, wenn langlebige  $\alpha$ -Strahler ausgeschlossen werden können. Die Aktivierung des Grundwassers liegt somit, ebenfalls wie die Luftaktivierung, weit unterhalb der Grenzwerte der StrlSchV.

### 7.1.2. MCNP-Simulation zur Bestimmung der Äquivalentdosen im Strahlungsumfeld der PGNAA-Anlage

Die Äquivalentdosis  $H$  ist das Produkt aus der Energiedosis  $D$  [ $\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}$ ] und dem Strahlungswichtungsfaktor  $w_R$  (früher Qualitätsfaktor) ( $H = D \cdot w_R$ ). Es handelt sich bei der Energiedosis um die in einem Absorber abgegebene Energie einer ionisierenden Strahlung. Der Strahlungswichtungsfaktor trägt der relativen biologischen Wirksamkeit der jeweiligen Strahlungsart Rechnung. Je nachdem ob es sich bei der ionisierenden Strahlung um Photonen, Elektronen, Neutronen, usw. handelt, sind die Schädigungen des Körpergewebes unterschiedlich stark ausgeprägt. Die Einheit der Äquivalentdosis entspricht der Einheit der Energiedosis, da der Strahlungswichtungsfaktor dimensionslos ist. Um die beiden physikalischen Größen dennoch voneinander unterscheiden zu können, wurde für die Äquivalentdosis die Bezeichnung Sievert [Sv] und für die Energiedosis Gray [Gy] eingeführt. In der Vergangenheit, vor der Einführung des SI-Systems<sup>29</sup>, wurden noch die Einheiten Rem<sup>30</sup> [rem] für die Äquivalentdosis und Rad<sup>31</sup> [rd] für die Energiedosis benutzt. Im MCNP-Code sind die alten Einheiten immer noch gebräuchlich.

Durch die Novellierung der Strahlenschutzverordnung ist die ohnehin komplizierte Berechnung der Äquivalentdosis noch schwieriger geworden. Der Strahlungswichtungsfaktor ist seitdem eine Funktion des linearen Energietransfers in Abhängigkeit von der Eindringtiefe der ionisierenden Strahlung in das Körpergewebe (Organdosis). Bei der Betrachtung des Strahlenfeldes außerhalb des Körpers nimmt der Strahlungswichtungsfaktor diskrete Werte an. In Tabelle 3 sind die Strahlungswichtungsfaktoren für Neutronen bei verschiedenen Energien angegeben.

MCNP rechnet anstelle des Strahlungswichtungsfaktors mit einem Dosis-Konversions-Faktor (DF). Dieser basiert auf Vorgaben verschiedener nationaler und internationaler Organisationen wie dem „National Council on Radiation Protection and Measurements“ (NCRP), der „International Commission on Radiological Protection“ (ICRP) und der „International Commission of Radiation Units and Measurements“ (ICRU).

**Tabelle 3:** Strahlungswichtungsfaktoren  $w_R$  für Neutronen nach NCRP-38 und ICRP-60.

Energie [MeV]	DF [(rem·h <sup>-1</sup> )/(n·cm <sup>2</sup> ·s <sup>-1</sup> )]	DF [(Sv·h <sup>-1</sup> )/(n·cm <sup>2</sup> ·s <sup>-1</sup> )]	$w_R$
$2,5 \cdot 10^{-8}$	$3,67 \cdot 10^{-6}$	$3,67 \cdot 10^{-8}$	2,0
$1,0 \cdot 10^{-1}$	$2,17 \cdot 10^{-5}$	$2,17 \cdot 10^{-7}$	7,5
1,0	$1,32 \cdot 10^{-4}$	$1,32 \cdot 10^{-6}$	11,0
2,5	$1,25 \cdot 10^{-4}$	$1,25 \cdot 10^{-6}$	9,0
5,0	$1,56 \cdot 10^{-4}$	$1,56 \cdot 10^{-6}$	8,0
7,0	$1,47 \cdot 10^{-4}$	$1,47 \cdot 10^{-6}$	7,0
10,0	$1,47 \cdot 10^{-4}$	$1,47 \cdot 10^{-6}$	6,5
14,1	$2,08 \cdot 10^{-4}$	$2,08 \cdot 10^{-6}$	7,5

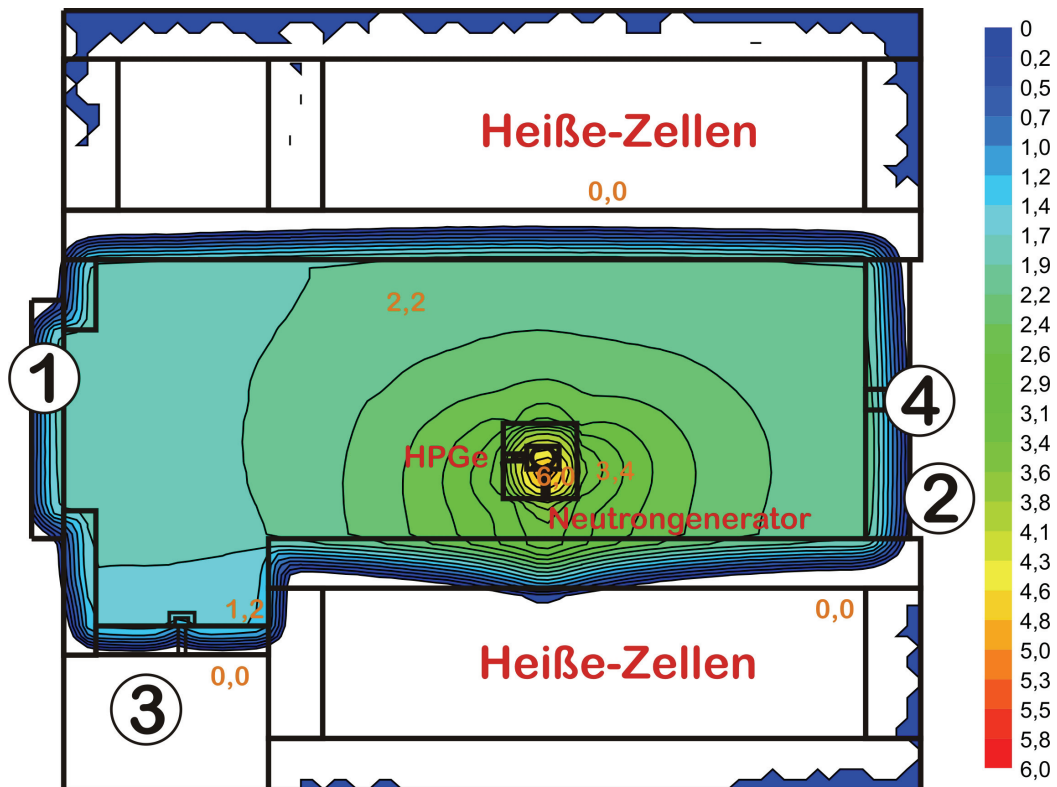
<sup>29</sup> SI = *Système international d'unités*, ist das internationale Einheitensystem für physikalische Größen.

<sup>30</sup> REM = Roentgen equivalent in man; 1 rem = 0,01 Sv.

<sup>31</sup> Rad = Radiation absorbed dose; 1 rd = 0,01 Gy.

Für die Berechnung der Äquivalentdosis wurden die Experimentierhalle und die angrenzenden Laboratorien mit MCNP modelliert. Um die Wirkungsweise der verschiedenen Abschirmungen zu überprüfen, wurden an vier signifikanten Stellen die Photonen und Neutronen Äquivalentdosen berechnet. Die erste Abschirmbarriere stellt die Graphitkammer dar. Sie hat nach allen Seiten eine Wandstärke von mindestens 40 cm. Ihr folgt die Betonabschirmung der Beschickungszone. Diese besteht aus Barytbeton mit einer Dichte von  $3,53 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  und einer Wandstärke zwischen 50 cm und 85 cm. Zudem gibt es ein Bleiglasfenster (4) in Richtung des umlaufenden Gangs (2).

Nach der StrlSchV beträgt der Grenzwert für die effektive Dosis einer beruflich strahlenexponierten Person 20 mSv pro Kalenderjahr. Angenommen die PGNAA-Anlage läuft 2000 Stunden im Jahr, dann dürfen nicht mehr als  $10 \mu\text{Sv}$  pro Betriebsstunde, in den Bereichen wo sich das Personal aufhält, wie dem Kontrollraum (3) und vor dem Tor (1), auftreten. In Abbildung 18 ist der totale Neutronenfluss in der Experimentierhalle und den angrenzenden Räumen dargestellt.



**Abbildung 18:** Der Konturplot zeigt den totalen Neutronenfluss in der Experimentierhalle, auf der Höhe des Neutronengenerators. Die Farbskala gibt den Exponenten des Neutronenflusses an, beispielsweise entspricht 3,8 einem Neutronenfluss von  $6310 \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ . Die Zahlen in den Kreisen markieren die signifikanten Stellen für die Dosisleistungsberechnung: 1 steht für das Schiebetor, 2 für den umlaufenden Gang, 3 für den Kontrollraum und 4 für das Bleiglasfenster.

Die Ergebnisse aus der MCNP-Studie sind in Tabelle 4 dargestellt. Die Grenzwerte für strahlenexponierte Personen werden an keiner der relevanten Stellen, wo sich Personal während des Betriebs der PGNAA-Anlage aufhalten könnte, überschritten.

**Tabelle 4:** Mit MCNP berechnete Dosisleistung in den angrenzenden Räumen der Experimentierhalle nach einem Dauerbetrieb von einer Stunde und einer Quellstärke des Neutronengenerators von  $1 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$ .

Simulationsort	Ortsdosisleistung im Dauerbetrieb		Ortsdosisleistung für 2000 h Dauerbetrieb	
	Neutronen [ $\mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$ ]	Gamma [ $\mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$ ]	Neutronen [mSv]	Gamma [mSv]
Vor dem Schiebetor	$7,3 \cdot 10^{-2}$	$5,9 \cdot 10^{-3}$	0,14	0,01
Hinter dem Schiebetor (Exp.-Halle)	10	$4,7 \cdot 10^{-1}$	20	0,95
Wand am umlaufenden Gang	$2,2 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-3}$	0,04	< 0,01
Wand im Kontrollraum	$6,2 \cdot 10^{-3}$	$2,2 \cdot 10^{-3}$	0,01	< 0,01
Vor dem Bleiglasfenster	$4,2 \cdot 10^{-2}$	$3,0 \cdot 10^{-3}$	0,08	< 0,01
Vor der Kabeldurchführung	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$4,7 \cdot 10^{-3}$	0,03	< 0,01

Die Ortsdosisleistung wurde auch direkt an der Oberfläche der PGNAA-Anlage berechnet, um einen Eindruck von dem Abschirmvermögen der Graphitkammer zu erhalten. Für den Fall, dass die Anlage in Zukunft in einem anderen Labor aufgebaut wird, ergeben sich dadurch Ausgangspunkte für die Planung des Strahlenschutzes. In Tabelle 5 sind die Ergebnisse der Ortsdosisleistungsberechnung dargestellt.

**Tabelle 5:** Mit MCNP berechnete Dosisleistung an der Oberfläche der Messkammer nach einem Dauerbetrieb von einer Stunde und einer Quellstärke des Neutronengenerators von  $1 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$ .

Simulationsort	Ortsdosisleistung im Dauerbetrieb		Ortsdosisleistung für 2000 h im Jahr (Dauerbetrieb)	
	Neutronen [mSv·h <sup>-1</sup> ]	Gamma [ $\mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$ ]	Neutronen [Sv]	Gamma [Sv]
Neutronengenerator-Seite	13	85	26	0,17
Gegenüber von dem NG	1	17	2	0,03
Detektor-Seite	1	20	2	0,04
Gegenüber vom Detektor	2	34	4	0,07
Oberseite der Graphitkammer	3	44	7	0,09

Wie zu erwarten zeigen die Ergebnisse, dass die Ortsdosisleistung direkt hinter dem Neutronengenerator am größten ist. Hier besitzt die Graphitabschirmung eine Öffnung, in der das Neutronenrohr platziert ist.

### 7.1.3. Messung der Ortsdosisleistung in den benachbarten Räumen der Experimentierhalle

Nachdem der Aufbau der PGNAA-Anlage in der Experimentierhalle fertiggestellt wurde und das Interlocksyste**m** betriebsbereit war, wurden vom TÜV Rheinland Messungen mit einer Neutronensonde durchgeführt. Für diese Messungen wurde der Neutronengenerator im CW-Modus mit der maximalen Quellstärke von  $2 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  betrieben. Es wurden vier Messorte ausgewählt, an denen die höchsten Ortsdosisleistungen außerhalb der Experimentierhalle zu erwarten waren. An jedem Messort wurde im Vorfeld der Nulleffekt gemessen. Die Messung bei eingeschaltetem



Neutronengenerator dauerte insgesamt über 2 Stunden. Die Ergebnisse der TÜV Messungen sind in Tabelle 6 aufgeführt.

**Tabelle 6:** Gemessene Ortsdosisleistung und daraus berechnete Jahresdosen beim Betrieb des Neutronengenerators Genie 16GT, durchgeführt von dem TÜV Rheinland.

Messort	Nulleffekt Dosisleistung		Gemessene Dosisleistung		Ortsdosisleistung für eine Strahlzeit von 2000 h im Jahr	
	Neutronen [ $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ ]	Gamma [ $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ ]	Neutronen [ $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ ]	Gamma [ $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ ]	ermittelt [mSv]	zulässig [mSv]
Im Kontrollraum, direkt vor der Kabeldurchführung	-	-	0,1	< 0,1	< 0,4	6
Vor dem Schiebtor (unten)	0,02	0,7	0,38	0,7	0,8	6
Vor dem Schiebtor (mittlerer Torspalt)	0,02	0,7	1,1	0,8	2,4	6
Direkt vor dem Bleiglasfenster	-	-	0,15	< 0,1	< 0,5	6

Die Messungen haben ergeben, dass selbst bei der maximalen Leistung des Neutronengenerators die zulässigen Grenzwerte für die Ortsdosisleistung an keinem Ort in unmittelbarer Nähe zur Experimentierhalle überschritten werden.

#### 7.1.4. Bestimmung der Personen-Tiefendosis<sup>32</sup> $H_p(10)$ im Umfeld der Graphitkammer

Um eine Aussage über das Strahlungsfeld in der unmittelbaren Umgebung der PGNA-Anlage treffen zu können, wurden Messungen zur Bestimmung der Personen-Tiefendosis durchgeführt. Dafür wurden Albedo-Dosimetersonden des Typs MPA-Albedo-GD01 verwendet [MPA2007]. Dieser Dosimetertyp wird normalerweise als Ganzkörperdosimeter eingesetzt und dient zur Bestimmung der Personendosis in gemischten Neutronen- und Gammastrahlungsfeldern. Da die Bestimmung der Neutronendosis über den Albedoeffekt<sup>33</sup> erfolgt, wurden die Rückseiten der verwendeten Dosimeter mit 2 cm dicken Polyethylen-Plättchen versehen. Ein zusätzliches Dosimeter wurde an der Frontseite der PE-Abschirmung des Kabelkanals angebracht, um die Äquivalentdosis etwas abseits der PGNA-Anlage zu bestimmen. In Abbildung 26 – Abschnitt 7.5.3 sind zwei der sieben angebrachten Albedodosimeter zu sehen.

Durch frühere Forschungsarbeiten sind große Teile der Experimentierhalle leicht mit  $^{137}\text{Cs}$  kontaminiert. Diese in dem Beton gebundene Kontamination stellt keine Gefahr dar, aber sie führte

<sup>32</sup> Die Personen-Tiefendosis ist die Äquivalentdosis in weichem Gewebe in einer Tiefe von 10 mm, sie dient der Messung der durch externe Exposition im ganzen Körper aufgenommen Strahlung (Ganzkörperexposition).

<sup>33</sup> Die Neutronendosisbestimmung erfolgt hinter den Albedofenstern über die Messung der im Körper (hier PE-Plättchen) moderierten und dabei zurückgestreuten Neutronen.

zu einem erhöhten Compton-Untergrund in den gemessenen Gamma-Spektren. Die genaue Größe der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität konnte nicht bestimmt werden, da sie großflächig verteilt war.

Die Auswertung der Albedomessergebnisse wurde durch das Materialprüfungsamt des Landes Nordrhein-Westfalen in Dortmund durchgeführt. Wegen der Energieabhängigkeit des Neutronenansprechvermögens wurden für die Auswertung die Kalibrierfaktoren für den Anwendungsbereich „Reaktoren und Beschleuniger mit starker Abschirmung“ benutzt. In Tabelle 7 sind die ermittelten Personen-Tiefendosen  $H_p(10)$  für den Zeitraum von Februar bis April 2009 dargestellt. Die Experimente wurde in diesem Zeitraum überwiegend mit einer Neutronenquellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  durchgeführt. Die MCNP-Ergebnisse für die Ortsdosisleistung aus Tabelle 5 wurden unter der Annahme derselben Bestrahlungsbedingungen umgerechnet und sind ebenfalls in der Tabelle 7 zum Vergleich dargestellt. Ein Vergleich der Gammadosiswerte ist schwieriger, da durch den Strahlungsuntergrund in der Experimentierhalle von den Albedodosimetern eine überhöhte Gammadosis gemessen wurde.

**Tabelle 7:** Personen-Tiefendosen  $H_p(10)$  nach 28 h NG-Betrieb an der Oberfläche des PGNA-Systems.

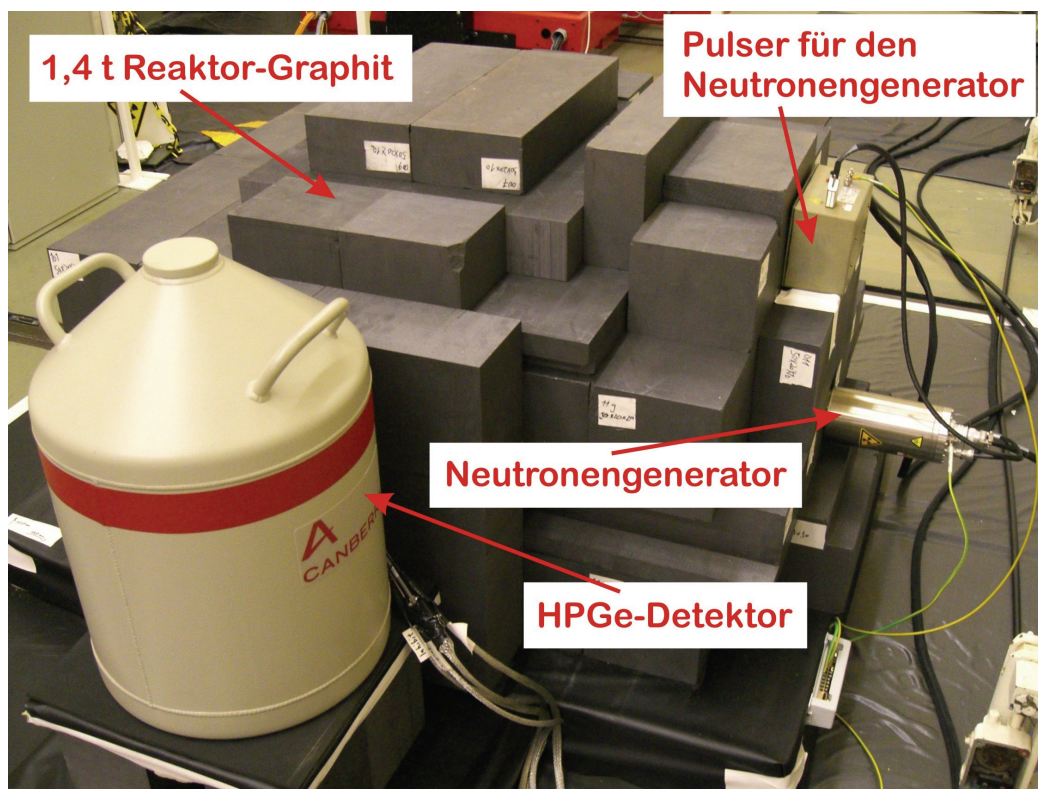
Dosimeter Position	Dosimeter- Nummer	$H_p(10)$ Gammadosis [mSv]	$H_p(10)$ Neutronendosis (N1) [mSv]	MCNP Ortsdosis [mSv]
NG Seite	5585	0,8	1,8	3,3
NG Seite an der Wand befestigt	5586	0,3	0,5	-
Gegenüber vom NG	5581	0,3	0,2	0,3
Detektor Seite	5582	0,7	0,2	0,3
Gegenüber vom Detektor	5584	0,1	0,3	0,5
Oberseite der Graphitkammer	5583	0,6	0,4	0,8
PE-Abschirmung vor dem Kabelkanal	5580	1,5	0,1	-

Der Grund warum die Personen-Tiefendosis im Bereich der PE-Abschirmung, vor dem Kabelkanal für Gamma-Strahlung, höher ist als für die Neutronenstrahlung, liegt an einer kontaminierten Pumpe in 2 m Höhe über der PE-Abschirmung. Messungen haben eine Gammadosisleistung von  $1,0 \mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$  auf der Höhe des Albedo-Dosimeters ergeben.

Der Hersteller des Neutronengenerators gibt für eine Quellstärke von  $2 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  eine Äquivalentdosis von ca.  $2,4 \text{ mSv} \cdot \text{h}^{-1}$  in 1 m Abstand zu dem unabgeschirmten Neutronengenerator an. Bei einem Betriebsmodus von  $4 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$ , der maximalen Leistung des NGs die nur in Ausnahmefällen gefahren werden darf, erhöht sich die Äquivalentdosis auf etwa  $5 \text{ mSv} \cdot \text{h}^{-1}$ .

## 7.2. Das PGNAA-Prototypsystem

Die wesentlichen Bestandteile des PGNAA-Prototypsystems sind der (D-T)-Neutronengenerator, der HPGe-Detektor mit einer relativen Effizienz von 100 % und die Graphitkammer. In Abbildung 19 ist ein Foto der Anlage gezeigt.



**Abbildung 19:** Auf dem Foto ist die PGNAA-Anlage abgebildet. Um die Proben in die Graphitkammer zu bringen, müssen die oberen Blöcke beiseitegelegt werden. Das Neutronenrohr befindet sich zu 2/3 in der Graphitkammer und nur der Teil, an dem die Hochspannung angeschlossen wird, ist sichtbar. Der HPGe-Detektor befindet sich ebenfalls zusammen mit der Neutronenabschirmung komplett im Graphit. In der Abbildung ist nur das Dewar-Gefäß, in dem sich der Stickstoff zur Kühlung des Germanium-Kristalls befindet, zu sehen.

## 7.3. Die Graphitkammer – Moderator und Reflektor

Die Messkammer besteht aus hochreinem Reaktor-Graphit mit einer Dichte von  $1,59 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ . Das Gewicht der einzelnen Blöcke liegt zwischen 5 und 32 kg, insgesamt wurden 1,4 t Graphit für die PGNAA-Anlage verbaut. Bei den Blöcken handelt es sich um ungenutzt und nicht bestrahlte Restbestände des AVR<sup>34</sup>-Projektes.

<sup>34</sup> AVR = Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor

Für die Moderation der schnellen Neutronen kommen in der Regel nur Wasser ( $\text{H}_2\text{O}$  bzw.  $\text{D}_2\text{O}$ ) und Graphit infrage. Diese Materialien besitzen ein sehr gutes Bremsvermögen, wie in Abschnitt 3.2 gezeigt werden konnte. Eine weitere Anforderung ist eine möglichst lange Lebendauer der thermischen Neutronen in der Messkammer, um im direkten Umfeld des zu bestrahlenden Probenköpers ein gleichmäßiges thermisches Neutronenfeld zu erzeugen.

Ein guter Moderator darf die Neutronen nur schwach absorbieren, d.h. der Absorptionsquerschnitt  $\Sigma_a$  muss klein sein. Ein besseres Maß für die Moderationseigenschaften als das Bremsvermögen ist das Bremsverhältnis  $\frac{\xi \cdot \Sigma_s}{\Sigma_a}$ . In Tabelle 8 sind das Bremsvermögen und das Bremsverhältnis für einige Moderatoren dargestellt.

**Tabelle 8:** Bremsvermögen und Bremsverhältnis einiger Elemente entnommen aus [Wirtz1958, S. 66]. Der Wert von Graphit weicht ein wenig von dem in Tabelle 1 berechneten Wert ab.

	Bremsvermögen [ $\text{cm}^{-1}$ ]	Bremsverhältnis
<b>Wasser</b>	1,46	75
<b>Schweres Wasser</b>	0,25	9300
<b>Beryllium</b>	0,15	142
<b>Graphit</b>	0,06	265
<b>Helium</b>	-	83

Graphit ist nach schwerem Wasser für die Anforderungen am besten geeignet. Da aber die Handhabung von schwerem Wasser in der notwendigen Menge schwierig ist und der damit verbundene Preis extrem hoch wäre, kam nur Graphit als Moderator und Reflektor infrage.

## 7.4. Der Neutronengenerator

Für ein kompaktes System zur Analyse großvolumiger Proben mittels PGNAA bzw. der zyklischen Neutronen-Aktivierung ist als Quelle ein Neutronengenerator den Radionukliden vorzuziehen. In Abschnitt 3.3.4 wurde die grundlegende Funktionsweise eines Neutronengenerators beschrieben. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein (D-T)-Neutronengenerator vom Typ Genie 16GT der Firma EADS SODERN verwendet. Die Charakteristiken des NG sind in Tabelle 9 aufgeführt.

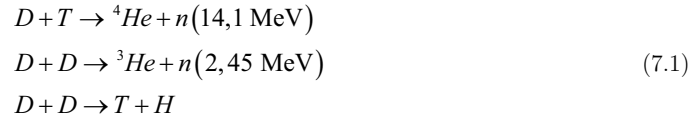
**Tabelle 9:** Charakteristiken des Genie 16GT Neutronengenerators [EADS2007].

<b>Maximale Quellstärke</b>	[ $\text{n}\cdot\text{s}^{-1}$ ]	$2\cdot 10^8$
<b>Neutronenpulsbreite</b>	[ $\mu\text{s}$ ]	$< 1,5$
<b>Puls-Frequenz</b>	[Hz]	10 – 10000
<b>Mittlere Betriebslebensdauer</b>	[h]	4000
<b>Maximaler Ionenstrom</b>	[ $\mu\text{A}$ ]	80
<b>Beschleunigungsspannung</b>	[kV]	Bis zu 110
<b>Abmessungen</b>	[mm]	$\varnothing = 152$ , Länge = 740

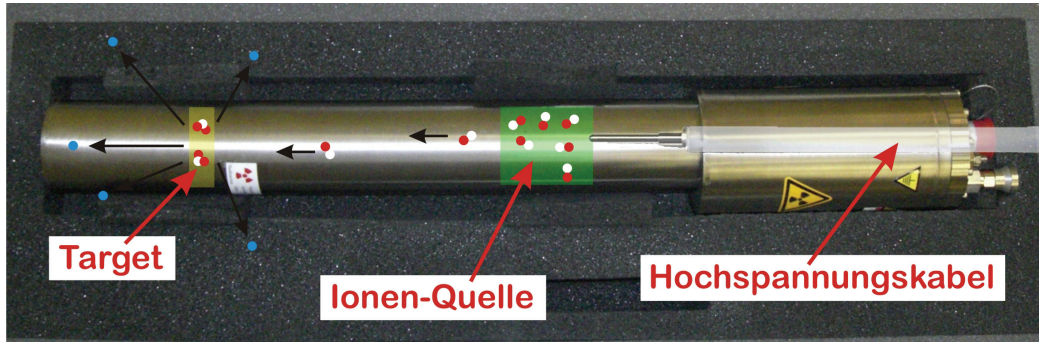
Der Neutronengenerator besteht aus einem Neutronenrohr, einem Pulser und einer Steuerungselektronik, die gleichzeitig auch die Hochspannungsversorgung (2 kV) zur Beschleunigung

der Deuteronen bereitstellt. Das System verfügt über eine serielle Schnittstelle, mittels der die Steuerung des Neutronengenerators über einen handelsüblichen PC möglich ist.

Im Neutronenrohr sind die Ionen-Quelle (Penning Falle) und das Target fest verbaut. Sowohl die Ionenquelle, als auch das Target beinhalten eine Mischung aus 50 % Deuterium und 50 % Tritium<sup>35</sup>. Während des Betriebs laufen drei verschiedene Fusionsreaktionen ab:



Die (D-T)-Reaktion ist mit 95 % die dominierende Fusionsreaktion, wobei die anderen beiden Reaktionen mit gleich großer Wahrscheinlichkeit stattfinden. Obwohl die dritte Reaktion keine Neutronen liefert, hat sie den vorteilhaften Effekt, dass sie Tritium für die (D-T)-Reaktion erbrütet und dadurch die Betriebslebensdauer des Neutronengenerators verlängert. In Abbildung 20 ist ein Foto des Neutronenrohrs dargestellt.



**Abbildung 20:** Auf dem Foto ist das künstlerisch verfremdete Neutronenrohr in seiner Transportkiste zu sehen. Das Deuterium-Gas wird durch die Hochspannung ionisiert und die Deuteronen auf das Tritium-Target beschleunigt. In Folge der (D-T)-Reaktion werden Neutronen (blau) in alle Richtungen emittiert.

Der Neutronengenerator kann in drei verschiedenen Betriebsmodi genutzt werden. Neben dem Dauerbetrieb (CW-Modus) ist es möglich sowohl Neutronenpulse (Pulsmodus), als auch Bündel aus Pulsen (Burst-Modus) zu erzeugen. Der Nutzer hat im Pulsmodus die Möglichkeit die Pulslänge über die Exzitationszeit  $T_e$  und die Periode über die Repetitionszeit  $T_r$  auszuwählen. Im Burst-Modus werden die Einstellmöglichkeiten um die Emissionszeit der Bündel  $T_{em}$  und die Zykluszeit  $T_z$  erweitert. Bei der zyklischen Neutronen-Aktivierung im Pulsmodus muss beachtet werden, dass die Pulslänge nicht eindeutig durch die Exzitationszeit definiert ist. Vor jedem Neutronenpuls gibt es eine Zeitverzögerung, die durch den Triggervorgang der Elektronik bestimmt ist. Anhand von Informationen aus des Betriebshandbuch des Neutronengenerators [EADS2007, S. 24ff] wurde für die Berechnung der Zeitverzögerung  $T_{delay}$  eine Funktion abgeleitet (siehe Abbildung 21):

$$T_{delay} = 162747,51 \cdot I_{peak}^{-1,449} \tag{7.2}$$

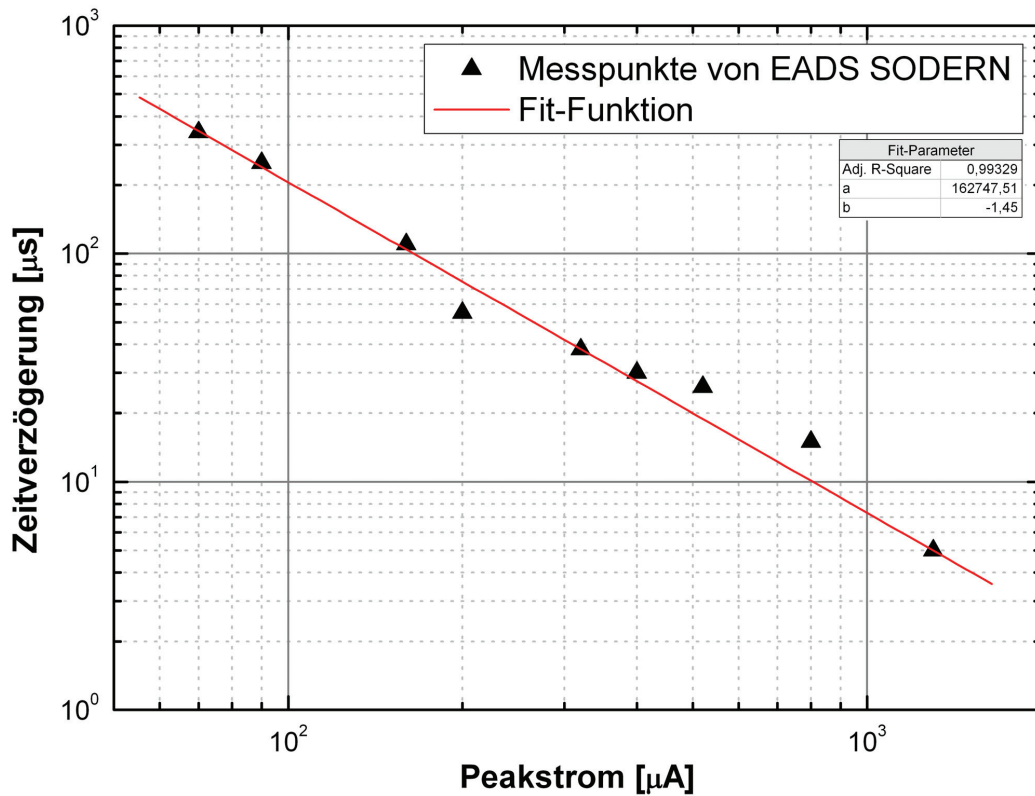
<sup>35</sup> Tritium ist radioaktiv und emittiert  $\beta$ -Strahlung mit einer Halbwertszeit von 12,3 Jahren.

Hierbei ist  $I_{peak}$  der Peakstrom [ $\mu\text{A}$ ]. Er ist ein Produkt aus dem Ionenstrom  $I_{target}$  [ $\mu\text{A}$ ] und dem Kehrwert des sogenannten „duty cycle“  $\tau$ . Dieser berechnet sich aus der gewünschten Pulslänge  $T_{imp}$  [ $\mu\text{s}$ ] und der Repetitionszeit:  $\tau = T_{imp}/T_r$ . Tabelle 10 zeigt eine Beispielrechnung für einen 100  $\mu\text{s}$  Puls mit einer Repetitionszeit von 1 ms.

**Tabelle 10:** Beispiel einer Exzitationszeit-Berechnung.

$T_{imp}$ [ $\mu\text{s}$ ]	$T_r$ [ $\mu\text{s}$ ]	$\tau$	$I_{target}$ [ $\mu\text{A}$ ]	$I_{peak}$ [ $\mu\text{A}$ ]	$T_{delay}$ [ $\mu\text{s}$ ]	$T_e$ [ $\mu\text{s}$ ]
100	1000	0,1	12	120	145,25	245,25

Im Rahmen dieser Arbeit werden neben der Quellstärke auch die Einstellungen im Pulsmodus immer mit angegeben. In dem Beispiel von Tabelle 10 würden die Angaben folgendermaßen aussehen (1000-245-75-12): Der erste Wert gibt die Repetitionszeit [ $\mu\text{s}$ ], der Zweite die Pulslänge [ $\mu\text{s}$ ], der Dritte die Beschleunigerspannung [kV] und der letzte Wert den Ionenstrom [ $\mu\text{A}$ ] an.



**Abbildung 21:** Die Zeitverzögerung  $T_{delay}$  des Neutronenpulses hängt von dem Peakstrom ab, der wiederum von den Einstellungen der Elektronik beeinflusst wird. Die Messpunkte sind aus dem Handbuch von dem Neutronengenerator entnommen und mit der Funktion ( $y = a \cdot x^b$ ) gefittet worden.

Die Quellstärke des Neutronengenerators wird im Wesentlichen durch die Beschleunigungsspannung  $U_{HV}$  [kV] bestimmt. Bei der Auswahl einer geeigneten Spannung muss berücksichtigt werden, dass



Werte unter 70 kV und über 90 kV vermieden werden müssen, weil sie laut Hersteller zu Target-Erosion führen können.

Nach jedem Betrieb ist das Neutronenrohr noch kurzzeitig radioaktiv. In Abhängigkeit von der Strahlzeit und der eingestellten Quellstärke ist eine „Abkühlphase“ einzuhalten. Bei der Auslegung des Interlock-Systems wurde diese Phase berücksichtigt; deswegen ist der Zugang zur Experimentierhalle noch eine halbe Stunde nach dem Ende des Strahlbetriebes gesperrt. Im Handbuch des Neutronengenerators macht der Hersteller EADS SODERN Angaben zu den Äquivalentdosen, die in Abhängigkeit vom Betriebsmodus während der Abkühlphase zu erwarten sind [EADS2007, S. 13ff].

## 7.5. Das Spektrometer

Das Spektrometer bestand aus einem koaxialen hochreinen Germanium-Detektor der Firma Canberra und einer Nuklearelektronik von der Firma ORTEC, die die Signale von dem Detektor in auswertbare Daten umwandelte. Bei der Projektplanung wurde entschieden einen Detektor mit einer



**Abbildung 22:** Das Foto zeigt den HPGe-Detektor mit einer relativen Effizienz von 100 %. Die Abbildung wurde künstlerisch verfremdet, um den Aufbau des Detektors unter der Aluminium-Schutzkappe darzustellen.

hohen relativen Effizienz zu verwenden, um die hoch-energetische Gammastrahlung besser detektieren zu können und dadurch eine höhere Nachweisempfindlichkeit zu erreichen. In Abbildung 22 ist der Detektor dargestellt. Neben der Größe des Germanium-Kristalls ist der Vorverstärker entscheidend für die Analyse hoher Aktivitäten. Bei einem großen Kristall-volumen und einer hohen Gamma-Aktivität wird ein entsprechend hoher Ladungs-strom erzeugt. Der Vorver-stärker muss diese hohe Ladungsmenge in einem kurzen Zeitraum verarbeiten können, damit die Totzeit<sup>36</sup> des Systems nicht zu groß wird. Im folgenden Abschnitt über die Nuklearelektronik wird auf diese Problematik eingegangen.

<sup>36</sup> Die Totzeit (*Dead Time*) gibt prozentual an, wie viel Signal der Detektor (eigentlich der Vorverstärker) aufgrund zu hoher Aktivitäten nicht messen kann. Es wird zwischen der „*Live Time*“ (LT), der um die Totzeit korrigierten Messzeit, und der „*Real Time*“ (RT) bzw. Echtzeit unterschieden.

### 7.5.1. Die Nuklearelektronik

Die Nuklearelektronik ist neben dem Detektor ein wesentlicher Bestandteil des Spektrometers. Über sie wird sowohl der Detektor mit Hochspannung versorgt, als auch die Signale vom Vorverstärker, der ein festes Bauteil des Detektors ist, aufgezeichnet und für die Auswertung am Analyse-PC digitalisiert. Im Rahmen dieser Arbeit wurde neben der analogen auch die digitale Nuklearelektronik getestet. Die analoge Elektronik besteht aus einer Hochspannungsversorgung der Firma Canberra (Modell 3106D), einem Spektroskopie-Verstärker der Firma ORTEC (Modell 672) und einem 16-bit-Vielkanalanalysator (MCA<sup>37</sup>) mit integriertem ADC der Firma ORTEC (Modell A<sup>spec</sup>-927). Der MCA hat zwei Eingänge mit zwei separaten Analog-Digital-Wandlern, wodurch es möglich ist, zwei Gamma-Spektren unabhängig voneinander aufzunehmen. Die Auswertung der Gamma-Spektren erfolgte mit dem Programm GammaVision® der Firma ORTEC. Die analoge Elektronik zeichnet sich durch ihre einfache Bedienbarkeit aus. Im Gegensatz dazu war die relativ kompakte digitale Elektronik nicht so bedienerfreundlich. Sie ist für experimentelle Anwendung, bei denen ständig Änderungen der Einstellungen vorgenommen werden müssen, weniger gut geeignet. Der Einsatz der Digitalelektronik hatte zum Ziel, die Totzeit des Spektrometers zu reduzieren. Die Totzeit des Systems wird im Wesentlichen durch das Kristallvolumen, den Vorverstärker und den Verstärker bestimmt. Durch die Deposition der Gamma-Energie im Kristall wird ein Ladungsstrom erzeugt, der wiederum durch den Vorverstärker in ein Spannungssignal umgewandelt wird. Es gibt zwei verschiedene Vorverstärkertypen. Zum einen die FET<sup>38</sup>-Vorverstärker (Operationsverstärker) und zum anderen die DC-gekoppelten RC-Vorverstärker. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Vorverstärker letzteren Typs verwendet (Canberra Modell 2002CSL). Die Energie, die pro Sekunde detektiert werden kann, lässt sich nach folgender Gleichung bestimmen:

$$\frac{\text{Detektor Ladungsstrom [A]}}{\text{Energie-Rate [MeV s}^{-1}\text{]}} = 10^6 \cdot \frac{1,6 \cdot 10^{-19}}{2,98} = 0,05 \left[ \frac{\text{pA}}{\text{MeV s}^{-1}} \right] \quad (7.3)$$

wobei die Energie-Rate über den Widerstand R des Vorverstärkers festgelegt wird:

$$\text{Energie-Rate} = \frac{4 \cdot 10^5}{R [\text{G}\Omega]} \quad (7.4)$$

Für hochenergetische Gamma-Strahlung wird schnell das Limit der Energie-Rate von  $8 \cdot 10^5 \text{ MeV} \cdot \text{s}^{-1}$  erreicht. Durch den Einsatz eines FET-Vorverstärkers könnte eine größere Anzahl an Ereignissen gemessen werden, aber dafür wäre ein Komplettumbau des Detektors notwendig.

Die Messungen mit dem „Lynx Digital Signal Analyzer“ von Canberra und dem „digiDART“ System von ORTEC haben zwar gezeigt, dass sich mit einem digitalen System höhere Zählraten bei niedriger Totzeit erreichen lassen. Allerdings treten bei einem experimentellen Prototypsystem, wie der PGNA-Anlage, Problemstellungen und Fragen auf, die durch den Einsatz eines analogen Systems besser verstanden und behoben werden können.

Für die zyklische Aktivierung mit schnellen bzw. thermischen Neutronen wurden die Prompt-Gamma-Spektren separat gemessen. Dazu wurden die zwei Eingänge des Vielkanalanalysators über

<sup>37</sup> MCA = Multichannel Analyser

<sup>38</sup> FET = Feldeffekt Transistor



einen sogenannten digitalen Verzögerungsgenerator (Gate-Delay-Generator) mit dem Triggersignal des Neutronengenerators gespeist. Der Verzögerungsgenerator der Firma Signal Recovery (Modell 9650A) ermöglicht es das Triggersignal um ein Vielfaches von 0,01 ns zu verzögern, dadurch konnte sowohl während der Neutronenpulse, als auch dazwischen gemessen werden. Aufgrund der Aktivierung von  $^{12}\text{C}$ , Hauptelement des Graphits, konnte während der Neutronenpulse nur mit einer hohen Totzeit des Spektrometers gemessen werden. Die Totzeit konnte auf 60 % minimiert werden, indem bei einer geringen Quellstärke von  $1,5 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  und kurzen Pulsen von  $55 \mu\text{s}$  Länge gemessen wurde. In Abbildung 23 ist Verschaltung der Nuklearelektronik schematisch dargestellt.

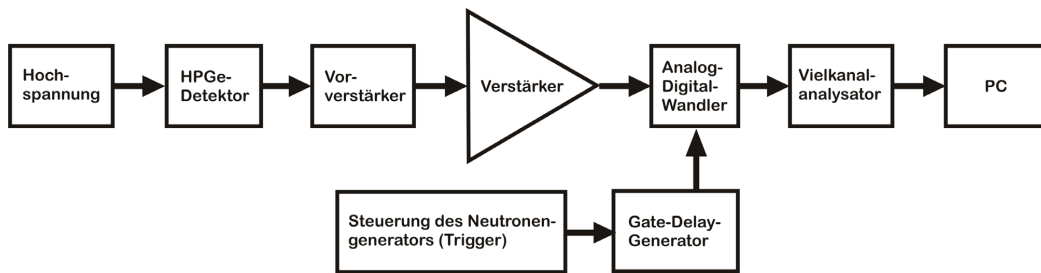


Abbildung 23: Schematische Darstellung der Verschaltung der Nuklearelektronik.

### 7.5.2. Optimierung der Nuklearelektronik

Es gibt zwei Parameter am Verstärker, an denen die Grobeinstellungen des Systems vorgenommen werden können. Die Verstärkungsstufe (*Coarse Gain*) regelt die Energiebandbreite bzw. ordnet die Energie den Kanälen des Vielkanalanalysators zu. Je größer die Verstärkung ist umso kleiner wird das Energiefenster des zu messenden Prompt-Gamma-Spektrums. Um ein Spektrum bis 12 MeV aufnehmen zu können, muss die Verstärkung der Elektronik sehr klein sein, gegebenenfalls muss ein  $50 \Omega$  Widerstand zwischen Vorverstärker und Verstärker geschaltet werden. Desweiteren ist die Abtastrate des Spannungssignales wichtig. Die Auflösung der Abtastung des Spannungspulses wird durch die sogenannte „*Shaping Time*“ festgelegt. Es handelt sich bei der *Shaping Time* um die Zeitkonstante der Verstärkung. Am Verstärker konnte eine *Shaping Time* zwischen  $0,5$  und  $10 \mu\text{s}$  eingestellt werden. Das Energieauflösungsvermögen eines Detektors wird durch die Halbwertsbreite (FWHM<sup>39</sup>) [keV] der Gamma-Linien beschrieben. Die Halbwertsbreite ist eine Funktion der Energie und nimmt mit steigender Energie linear zu. Physikalisch wird die Halbwertsbreite durch die Größe des Kristallvolumens bestimmt, da die Ladungsträger bei einem größeren aktiven Volumen einen längeren Zeitraum bis zum Erreichen der Elektroden benötigen. Je kleiner die Halbwertsbreite ist, umso besser ist die Auflösung, dadurch ist es möglich einzelne Linien im Gammaskpektrum besser voneinander zu trennen. Die Zeitkonstante beeinflusst direkt die Halbwertsbreite der Gamma-Peaks. Es wurde die Abhängigkeit der Halbwertsbreite von der *Shaping Time* mit dem Spektrum eine Punktquelle ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$  und  $^{133}\text{Ba}$ ) untersucht. In Abbildung 24 ist die Halbwertsbreite in Abhängigkeit von der Energie für eine *Shaping-Time* von  $2$  und  $6 \mu\text{s}$  dargestellt. Desweiteren ist in Tabelle 11 die Halbwertsbreite bei einer Energie von  $122$  und  $1332 \text{ keV}$  für drei verschiedene Zeitkonstanten dargestellt.

<sup>39</sup> FWHM = Full width at half maximum =  $2 \cdot \sqrt{2 \cdot \ln 2} \cdot \sigma = 2,35 \cdot \sigma$ , wobei  $\sigma$  die Streuung der Gaußverteilung darstellt.

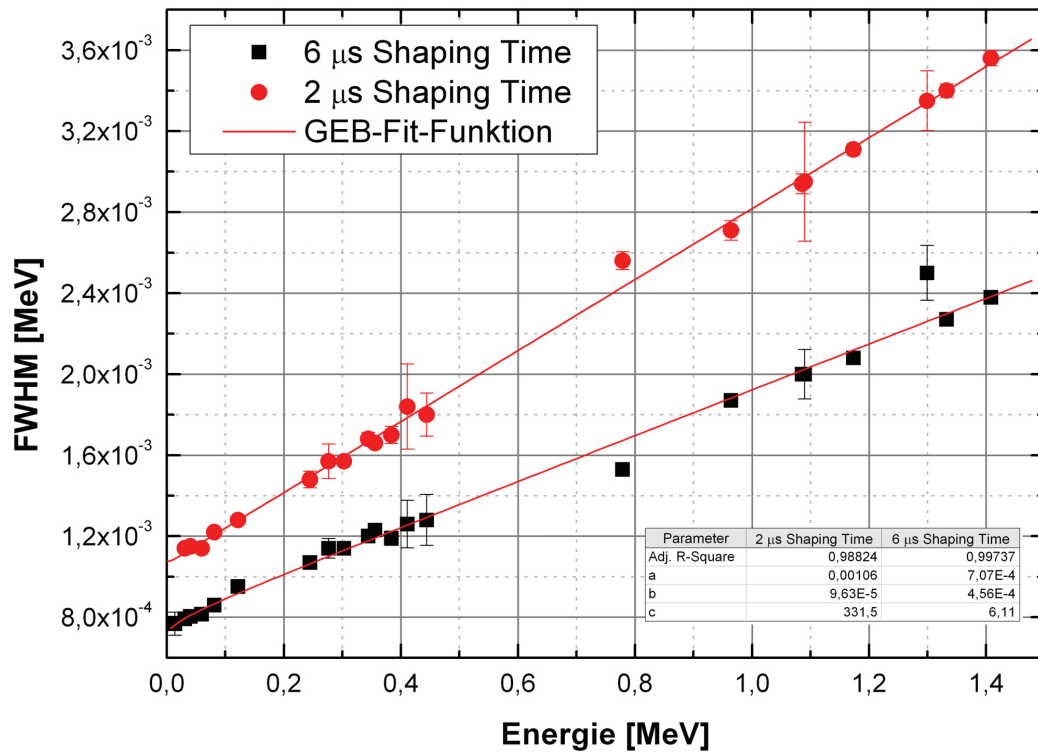


Abbildung 24: Halbwertsbreite in Abhängigkeit von der Energie für eine Shaping-Time von 2 und 6 µs.

Die Daten in Abbildung 24 wurden mit der GEB-Funktion gefittet (siehe Abschnitt 6.3.4):

$$FWHM = a + b \cdot \sqrt{E + c \cdot E^2} \quad (7.5)$$

**Tabelle 11:** Halbwertsbreite für unterschiedliche Zeitkonstanten. Die Punktquelle befanden sich in 35 cm Abstand zum Detektor im Zentrum der Messkammer. Die Spektren wurden über einen Zeitraum von 7200 s (Live Time) aufgenommen.

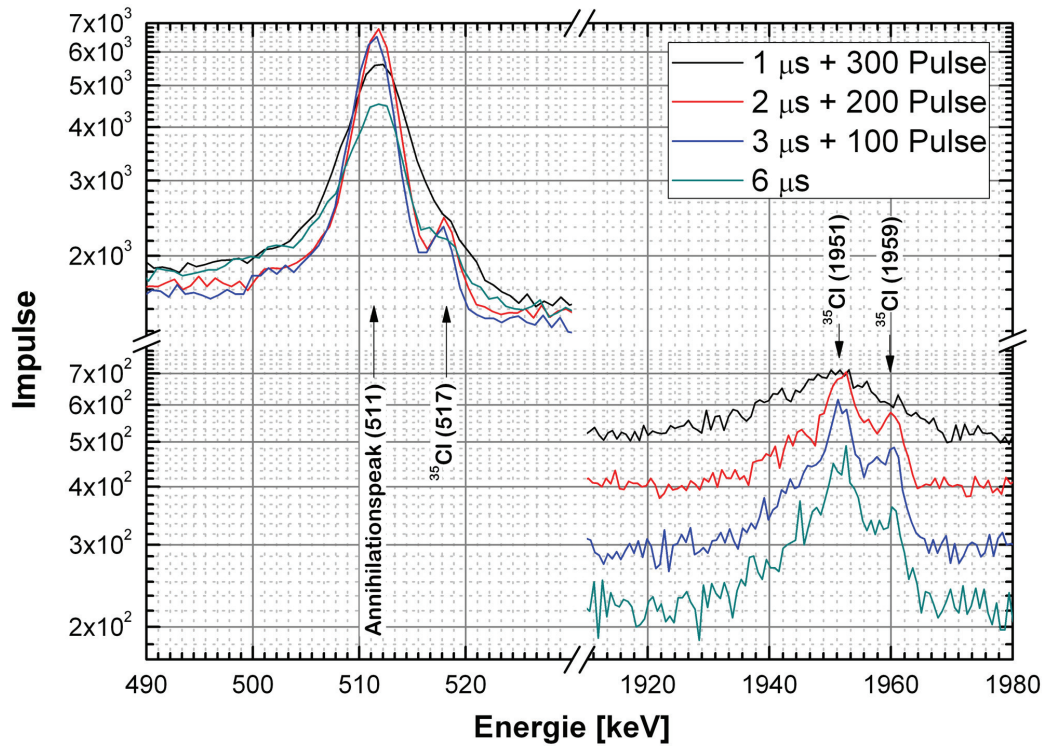
	2 µs Shaping Time	6 µs Shaping Time	10 µs Shaping Time
FWHM bei 122 keV	1,30 (4)	0,96 (3)	0,92 (3)
FWHM bei 1332 keV	3,68 (5)	2,36 (2)	2,26 (2)

Die Totzeit des Spektrometers ist sowohl mit der *Shaping Time*, als auch mit der Quellstärke des Neutronengenerators korreliert. Eine hohe Quellstärke führt zu einer entsprechend hohen Aktivität der Probe und erhöht demzufolge die Totzeit des Systems. Um die Totzeit möglichst gering zu halten, kann die Abtastrate reduziert werden. Dadurch arbeitet das System schneller, aber das Spektrum büßt dadurch an Auflösung ein. Es wurden Messungen durchgeführt, wobei die Quellstärke und die *Shaping Time* variiert wurden. Die leere Messkammer wurde im Pulsmodus jeweils 920 Sekunden (Live Time) lang bestrahlt. In Tabelle 12 sind die Ergebnisse dieser Messungen dargestellt.

**Tabelle 12:** Anhand der Gamma-Linie von  $^{12}\text{C}$  bei 1261 keV wurde die Korrelation zwischen *Shaping Time*, *Totzeit* und *Halbwertsbreite* untersucht.

Quellstärke $10^7 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$	Modus	Shaping Time $[\mu\text{s}]$	Totzeit $[\%]$	FWHM $[\text{keV}]$	Zählrate $[\text{s}^{-1}]$
1,5	1000-100-75-12	6	50,19	4,3 (2)	10,6 (1)
3,2	1000-100-80-18	2	49,95	5,6 (2)	21,0 (3)
2,8	1000-100-75-22	3	49,67	4,2 (2)	20,1 (3)
2,1	1000-100-80-12	3	40,65	4,0 (2)	16,7 (2)

Die Messergebnisse zeigen, dass eine *Shaping Time* von über 3  $\mu\text{s}$  und eine Quellstärke von über  $2,1 \cdot 10^7 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$  zu einer inakzeptablen Totzeit von über 40 % führen. Obwohl die Ergebnisse in Richtung 3  $\mu\text{s}$  und  $1,5 \cdot 10^7 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$  tendierten wurde noch eine Messreihe mit unterschiedlichen Abtastraten durchgeführt. Dazu wurde die leere Messkammer bei einer Quellstärke von  $1,5 \cdot 10^7 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$  im Pulsmodus (1000-100-75-12) bestrahlt. In Abbildung 25 ist ein Ausschnitt der gemessenen Spektren in den Energiebereichen 490 – 530 keV und 1900 – 1980 keV dargestellt, anhand dessen die unterschiedlichen Auflösungsvermögen zu beobachten sind. Die Abhängigkeit der *Shaping Time* wurde wieder an der Gamma-Linie von  $^{12}\text{C}$  bei 1261 keV untersucht (siehe Tabelle 13).



**Abbildung 25:** Die Abbildung zeigt einen Ausschnitt aus den Prompt-Gamma-Spektren der leeren Graphitkammer, die bei unterschiedlicher *Shaping Time* gemessen wurden. Alle Spektren wurden über einen Zeitraum von 460 Sekunden (*Live Time*) aufgezeichnet.

**Tabelle 13:** Halbwertsbreite und Totzeit in Abhängigkeit von der *Shaping Time*, anhand der Gamma-Linie von  $^{12}\text{C}$  bei 1261 keV.

Shaping Time [ $\mu\text{s}$ ]	Totzeit [%]	FWHM [keV]	Zählrate [ $\text{s}^{-1}$ ]
1	23,71	11,5 (7)	13,3 (1,1)
2	30,41	4,7 (4)	12,5 (5)
3	36,55	4,1 (3)	11,8 (6)
6	50,11	4,1 (3)	9,4 (5)

Diese Ergebnisse legen eine *Shaping Time* von 3  $\mu\text{s}$  nahe, da bei dieser Einstellung das Verhältnis der Halbwertsbreite zur Zählrate am besten ist. Für die Standardmessungen im Rahmen dieser Arbeit wurde die *Shaping Time* immer auf 3  $\mu\text{s}$  eingestellt.

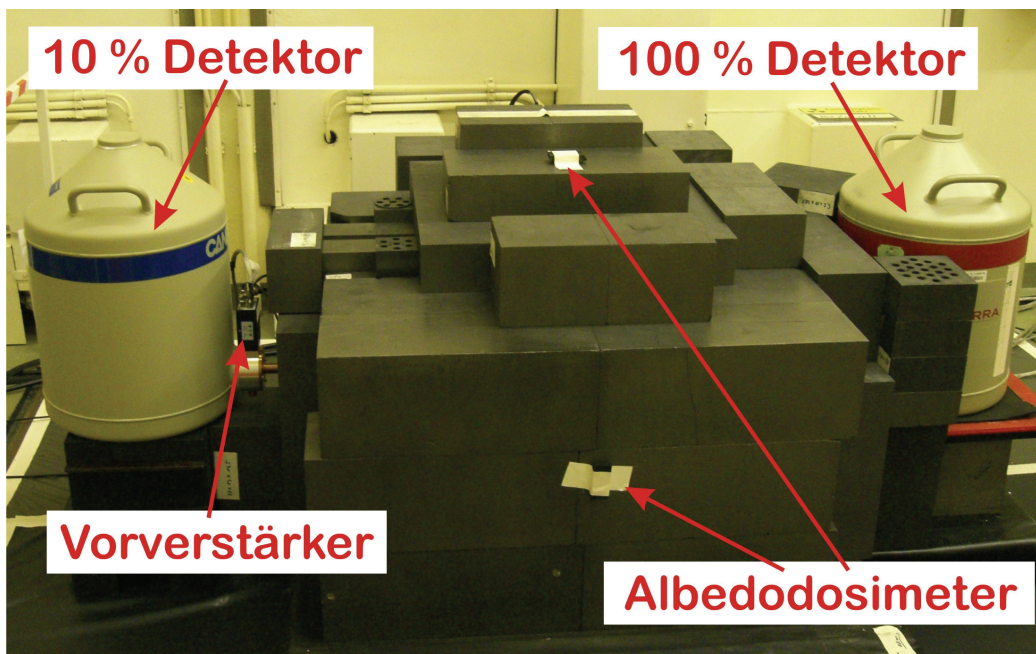
### 7.5.3. Detektor-Vergleich

Neben dem HPGe-Detektor mit einer relativen Effizienz von 100 % wurde auch ein HPGe-Detektor mit einer relativen Effizienz von 10 % getestet. Der Vergleich dieser beiden System soll die Vor- und Nachteile einer hohen Detektor-Effizienz verdeutlichen. In der Tabelle 14 sind die Eigenschaften der beiden HPGe-Detektoren aufgelistet.

**Tabelle 14:** Spezifikationen der *n*-Typ HPGe koaxial Detektoren der Firma Canberra, bei einer Verstärkereinstellung von 6  $\mu\text{s}$  *Shaping Time*.

		Modell GR10023/S mit Vorverstärker 2002CSL	Modell GR1020 mit Vorverstärker 2001C
Relative Effizienz	[%]	101,5	10
FWHM (122 keV)	[keV]	1,24	1,0
FWHM (1.33 MeV)	[keV]	2,21	2,0
Peak/Compton (1.33 MeV)		76,4:1	34:1
Energie Spektrum	[keV]	15 - 12000	15 - 12000
Hochspannung	[kV]	-5	-4

Der experimentelle Aufbau für den Detektor-Vergleich ist in Abbildung 26 dargestellt. Beide Detektor-Kristalle befinden sich in Öffnungen der Messkammer und sind mit Graphit umgeben. Zum Schutz der Germanium-Kristalle vor der Aktivierung durch thermische Neutronen sind die Detektor-Endkappen mit unterschiedlichen Abschirmungen versehen (in Abbildung 26 nicht zu sehen). Die Neutronenabschirmung des 10%-Detektors wurde aus Resten einer  $^6\text{Li}$ -Plastikfolie, die freundlicherweise vom Jülich Centre for Neutron Science (JCNS) zur Verfügung gestellt wurde, hergestellt. Diese Abschirmung hat nicht alle thermischen Neutronen abschirmen können. Aus diesem Grund wurden nur wenige Messungen mit dem System durchgeführt. Der 100%-Detektor wurde durch eine selbstkonstruierte Neutronenabschirmung geschützt, deren Herstellungsprozess in den Abschnitten 7.5.6 und 7.5.7 beschrieben wird.



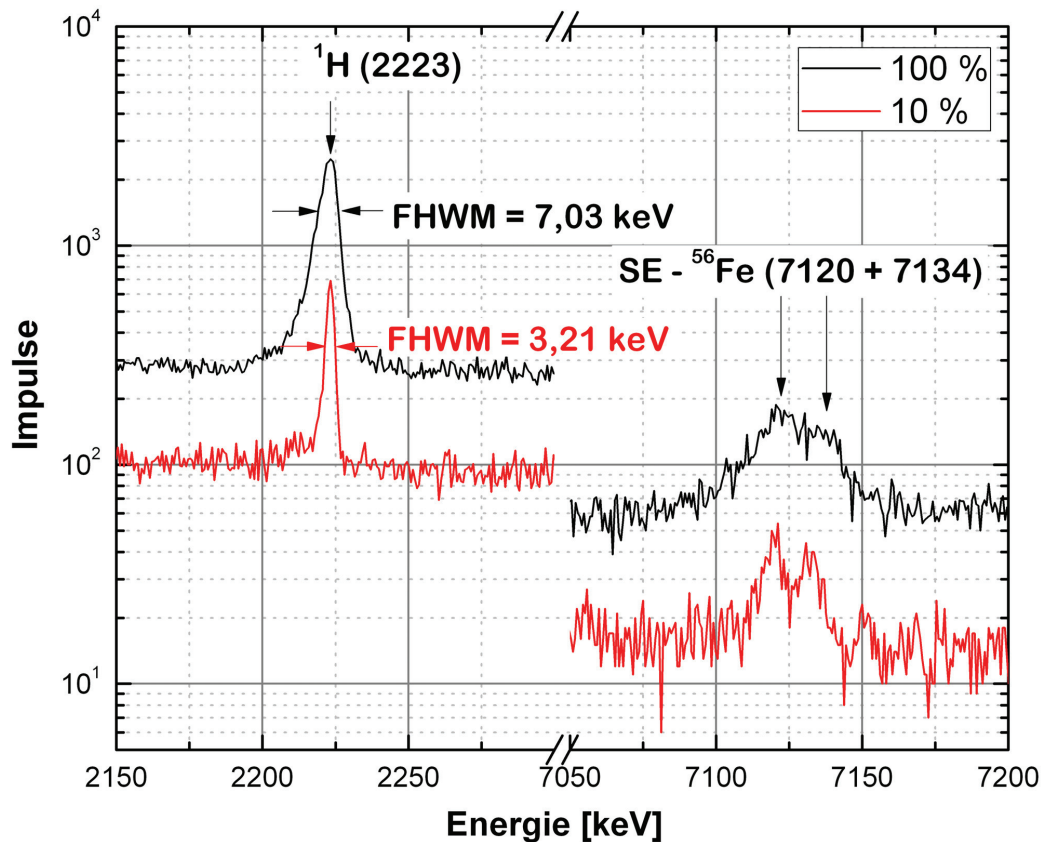
**Abbildung 26:** Das Foto zeigt die PGNAA-Anlage mit den verbauten 10 und 100 % Detektoren. Der Neutronengenerator befindet sich auf der vom Betrachter abgewandten Seite. Die Albedodosimeter wurden für die Messungen der Personen-Tiefendosen angebracht.

Die Prompt-Gamma-Spektren eines mit Beton gefüllten 25-l-Stahlfasses wurden benutzt, um die relativen Nachweisempfindlichkeiten der beiden Detektoren miteinander zu vergleichen. Das Probenfass mit einem Gesamtgewicht von 45,8 kg wurde mit einer Quellstärke von  $2,1 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus über einen Zeitraum von 1917 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 1 ms und einer Pulslänge von  $35 \mu\text{s}$  wurde die Probe 67 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,9 \cdot 10^6$  Pulsen. In Abbildung 27 ist ein Ausschnitt der Prompt-Gamma-Spektren gezeigt. Dank der kleineren Halbwertsbreite des 10-%-Detektors sind die Gamma-Linien schärfer und bei höheren Energien sind die einzelnen Peaks noch gut zu unterscheiden. Dafür sind die Zählraten deutlich geringer, als bei dem 100-%-Detektor. In dem Fall, dass beide Detektoren mit der gleichen Nuklearelektronik und den gleichen Einstellungen dieselbe Aktivität messen, müsste die Nachweisempfindlichkeit (NWG<sup>40</sup>) entsprechend dem Verhältnis ihrer relativen Effizienz 1:10 sein. Die Signale der beiden Detektoren wurden aber mit unterschiedlichen Elektroniken aufgenommen. Zudem konnte bei dem 100-%-Detektor nur mit einer *Shaping Time* von  $3 \mu\text{s}$  gemessen werden, da ansonsten die Totzeit zu groß gewesen wäre. Um eine Aussage über die relativen Nachweisempfindlichkeiten der beiden Detektoren zu treffen, wurden mehrere Gamma-Linien bei Energien von 138 bis 7630 keV miteinander verglichen. Für die Nachweisempfindlichkeit ist der Untergrund von entscheidender Bedeutung [Currie1968]. Vereinfacht kann das Verhältnis der Nachweisgrenzen (NWG) folgendermaßen ausgedrückt werden:

<sup>40</sup> Im späteren Teil der Arbeit wird statt von der Nachweisempfindlichkeit, von den Nachweisgrenzen (NWG) der PGNAA-Anlage gesprochen.

$$\frac{NWG_{100}}{NWG_{10}} = \frac{\varepsilon_{10}}{\sqrt{U_{10}}} \cdot \frac{\sqrt{U_{100}}}{\varepsilon_{100}} \approx \frac{1}{10} \cdot \sqrt{\frac{U_{100}}{U_{10}}} \quad (7.5)$$

mit  $\varepsilon$  der relativen Effizienz des Detektors und  $U$  der Untergrundfläche unter der betrachteten Gamma-Linie. Die anderen Größen, wie Neutronenfluss, Probenmasse, Messzeit, usw. lassen sich raus kürzen, da sie für beide Messungen gleich groß sind. Das Verhältnis der beiden absoluten Effizienzen ist über den kompletten Energiebereich in etwa 1:10. Letztendlich spielt nur das Verhältnis der jeweiligen Untergründe eine Rolle. Die Auswertung ergab für den oben genannten Energiebereich Werte zwischen 0,193 – 0,229 für das Verhältnis der Nachweisempfindlichkeiten. Das bedeutet, dass der 100-%-Detektor in diesem Fall eine um den Faktor 5 höhere Nachweisempfindlichkeit als der 10-%-Detektor besitzt.

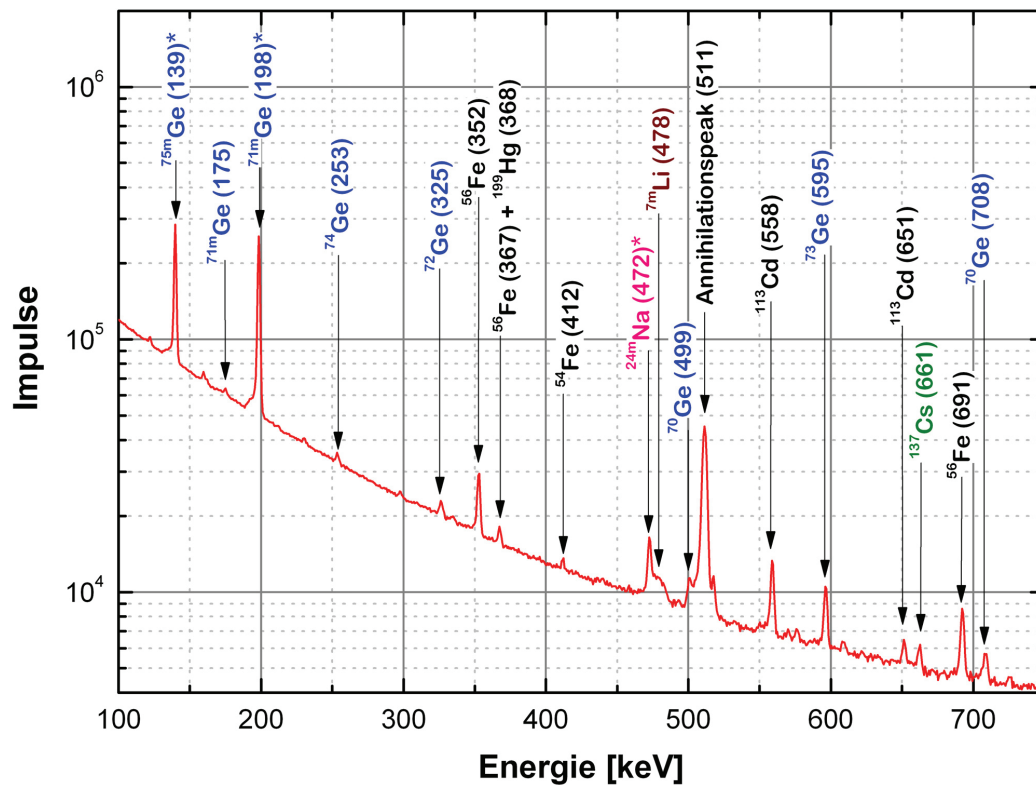


**Abbildung 27:** Die Abbildung zeigt den direkten Vergleich einer parallelen Messung des Prompt-Gamma-Spektrums einer 38 kg schweren Betonprobe, bei einem Gesamtgewicht des Probenfasses von 45,8 kg, mit dem 10 und 100 % Detektor. Es wurde der Bereich der Wasserstofflinie und der hochenergetische Bereich der Eisenlinien vergrößert, um die Auflösungsunterschiede der beiden Detektoren darzustellen. Die Shaping Time beim 100-%-Detektor war aufgrund der hohen Totzeit auf 3  $\mu$ s eingestellt. Der 10-%-Detektor wurde an die DigiDart-Elektronik angeschlossen, wobei die Einstellungen einer Shaping Time von 6  $\mu$ s entsprachen haben.



### 7.5.4. Neutronen-Aktivierung des Germanium-Kristalls

Der Detektor-Kristall ist von allen Seiten mit einer großen Menge an Graphit umgeben. Während der Neutronenbestrahlung der Probe ist der Detektor sowohl thermischen als auch schnellen Neutronen ausgesetzt. Obwohl es sich bei den verwendeten Detektoren um n-Typen handelt, kann es über einen längeren Betriebszeitraum des Neutronengenerators zu Strahlenschäden und damit verbunden Auflösungsminderungen kommen. Um dem entgegenzuwirken, muss der Germanium-Kristall mit einer geeigneten Abschirmung geschützt werden. Bevor über eine solche Abschirmung nachgedacht wurde, musste die Aktivierung des Germaniums überprüft werden. Dabei ging es vor allem darum, in wie weit die Aktivierung durch schnelle oder thermische Neutronen erfolgte. Die Aktivierung mit thermischen Neutronen ist relativ einfach zu beobachten, da sie durch viele Gamma-Linien im Spektrum begleitet wird. In Abbildung 28 ist ein Ausschnitt aus dem Prompt-Gamma-Spektrum einer schwermetallhaltigen Betonprobe dargestellt.



**Abbildung 28:** Das Diagramm zeigt einen Ausschnitt aus dem Gamma-Spektrum einer 38 kg schweren Betonprobe mit Schwermetallen. Die hervorgehobenen Germanium-Peaks stammen sowohl aus der Aktivierung mit thermischen als auch schnellen Neutronen (durch \* gekennzeichnet). Es wurden nicht alle bekannten Peaks beschriftet, um die Darstellung nicht zu komplex werden zu lassen. Der Peak bei 478 keV entsteht durch die Abregung des Lithiumisotop  $^{7m}\text{Li}$ , das durch inelastische Streuung mit  $\alpha$ -Teilchen angeregt wird (siehe Abschnitt 7.5.6).  $^{24m}\text{Na}$  entsteht durch die  $(n, \alpha)$ -Reaktion von  $^{27}\text{Al}$  (Detektorschutzhülle) mit schnellen Neutronen.

Bei der Messung in Abbildung 28 befand sich direkt vor dem Detektor eine  ${}^6\text{LiF}$ -Polymer-Folie, die aber keine ausreichende Neutronenabschirmung ermöglichte. Die signifikanteste Gamma-Linie von Germanium liegt bei 595,85 keV. Diese Linie wird durch die Reaktion  ${}^{73}\text{Ge}(n, \gamma){}^{74}\text{Ge}$  erzeugt und hat mit  $\sigma_\gamma = 1,1$  b den höchsten Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang bei Germanium.

Prompt-Gamma-Aktivitäten mit schnellen Neutronen werden nicht beobachtet, da der Detektor nur zwischen den Neutronenpulsen ein Signal misst. Es konnten nur verzögerte Gammas, die durch den Zerfall von angeregten Energiezuständen, die durch schnelle Neutronen erzeugt wurden, gemessen werden. Eine geeignete Reaktion ist  ${}^{76}\text{Ge}(n, 2n){}^{75\text{m}}\text{Ge}$ , die Halbwertszeit des angeregten Zustandes von  ${}^{75\text{m}}\text{Ge}$  beträgt 47,7 s [Firestone2004]. Die Haupt-Gamma-Linie des isomeren Übergangs (I. T.<sup>41</sup>) liegt bei 139,68 keV ( $I_\gamma = 39$  %). Nach einer Bestrahlung der leeren Messkammer mit einer Quellstärke von  $2,8 \cdot 10^7$  n·s<sup>-1</sup> im Pulsmodus (1000-100-75-22) über einen Zeitraum von 920 s wurden im direkten Anschluss, nach Abschalten des Neutronengenerators, 10 Spektren von jeweils 18 s Länge aufgenommen. Die Spektren wurden im Bereich der 139-keV-Linie ausgewertet und die Peakflächen gegenüber der Zeit aufgetragen (siehe Abbildung 29). Die Daten wurden mit einer exponentiellen Funktion gefittet:

$$y = a \cdot \exp\left(-\frac{t}{T_{1/2}}\right) + y_0 \quad (7.6)$$

Es wurde eine Halbwertszeit von  $48,42 \pm 1,55$  s bestimmt, die mit dem Literaturwert unter Berücksichtigung der Messunsicherheit übereinstimmt. Dieses Ergebnis zeigt eindeutig, dass der Germanium-Kristall durch schnelle Neutronen aktiviert wird.

Eine weitere Reaktion mit schnellen Neutronen ist  ${}^{72}\text{Ge}(n, 2n){}^{71\text{m}}\text{Ge}$  [Entwistle1989]. Allerdings hat der angeregte Zustand nur eine Halbwertszeit von 22 ms. Der angeregte Zustand von  ${}^{71}\text{Ge}$  kann auch durch eine thermische Neutronen-Aktivierung von  ${}^{70}\text{Ge}$  erreicht werden:  ${}^{70}\text{Ge}(n, \gamma){}^{71\text{m}}\text{Ge}$ . Die Haupt-Gamma-Linie bei dieser Reaktion liegt bei 175 keV.

---

<sup>41</sup> I. T. = Isomeric transition



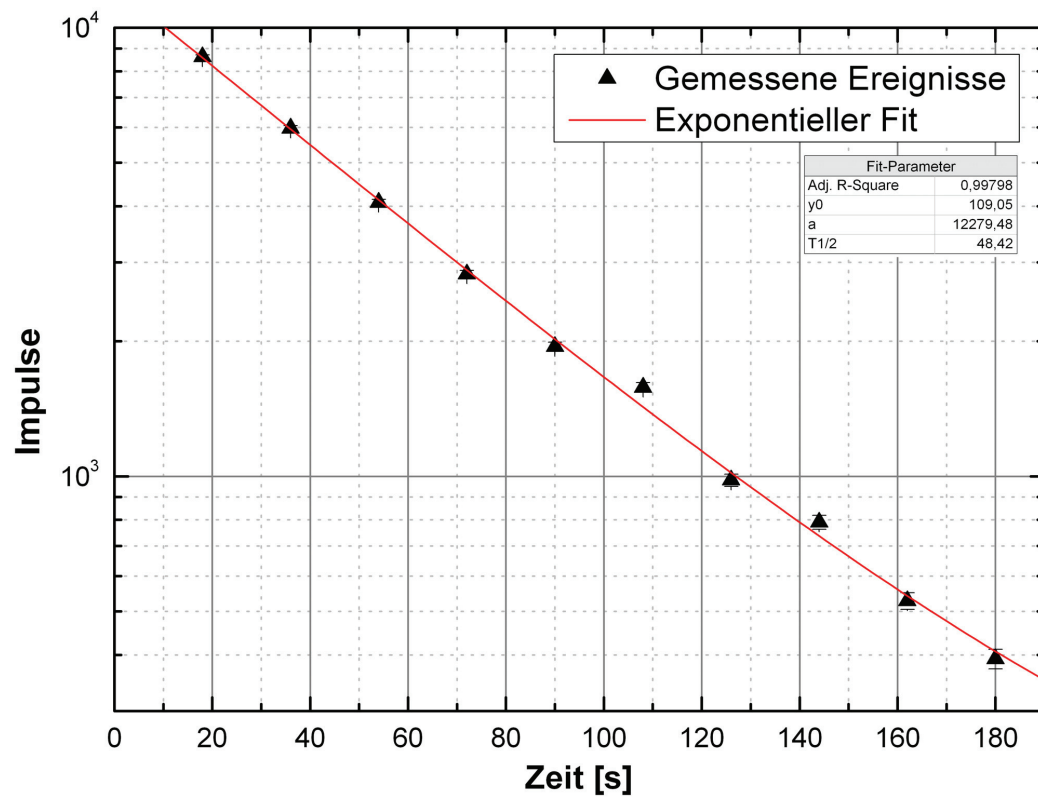


Abbildung 29: Bestimmung der Halbwertszeit von  $^{75m}\text{Ge}$ .

Über die Aktivierung des Germaniums wurde der mittlere schnelle Neutronenfluss in dem Germanium-Kristall berechnet. Für die Berechnung wurde ein Prompt-Gamma-Spektrum der leeren Graphitkammer benutzt. Die Kammer wurde über einen Zeitraum von 1828 s bei einer Quellstärke von  $2,8 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus (1000-100-75-22) bestrahlt. Bei einer Totzeit von 49,67 % lag die Detektor-Messzeit bei 920 s. Während dieser Zeit wurden  $410029 \pm 1040$  Ereignisse bei 139 keV (FWHM = 1,75 keV) und  $420491 \pm 890$  Ereignisse bei 198 keV (FWHM = 1,86 keV) gemessen. Die Berechnung des schnellen Neutronenflusses wurde mit der Gleichung 5.6 durchgeführt, dabei ist  $t_p = 35 \text{ } \mu\text{s}$ ,  $t_c = 965 \text{ } \mu\text{s}$ ,  $T = 1 \text{ ms}$ ,  $t_w = 0$  und  $n = 92 \cdot 10^5$ . Die Anzahl der Atomkerne  $N$  wird durch das Gewicht des Germanium-Kristalls von 2139 g bestimmt. Die Photopeak-Effizienz  $\varepsilon$  für die zwei Gamma-Linien kann mit 100 % abgeschätzt werden, da die Aktivierung direkt im Detektormaterial stattgefunden hat. Für die beiden Aktivierungsprodukte  $^{71m}\text{Ge}$  und  $^{75m}\text{Ge}$  sind die schnellen Neutronenflüsse berechnet worden (siehe Tabelle 15).

**Tabelle 15:** Berechnung des mittleren schnellen Neutronenflusses im Germanium-Kristall nach Gleichung 5.6.

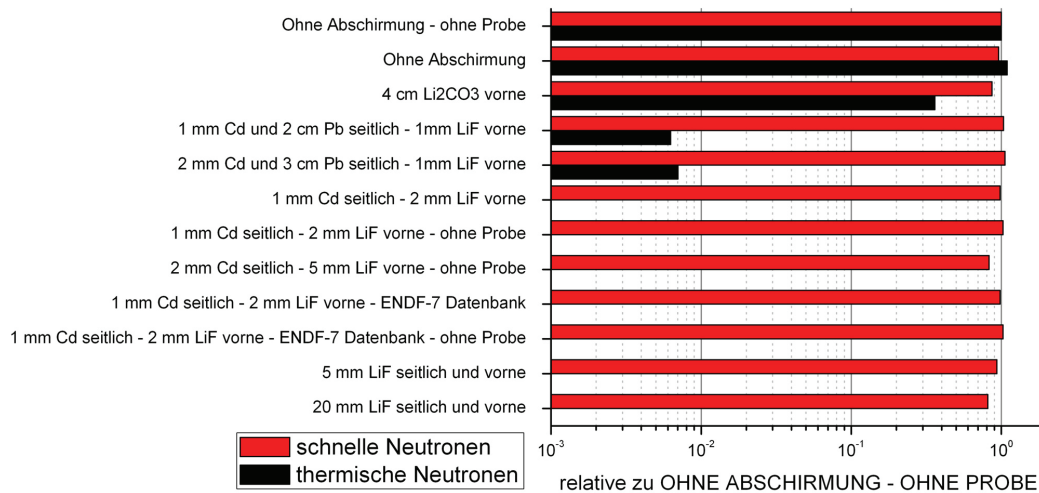
		<sup>71m</sup> Ge	<sup>75m</sup> Ge
Isotopenhäufigkeit $h_z$	[%]	<sup>72</sup> Ge = 27,3	<sup>76</sup> Ge = 7,44
Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\gamma f}$	[b]	0,10 (4)	1,0 (3)
Intensität der $\gamma$ -Linie $I_\gamma$	[%]	100	39
Halbwertszeit $T_{1/2}$	[s]	$20,4 \cdot 10^{-3}$	47,7
Zerfallskonstante $\lambda_t$	[s <sup>-1</sup> ]	33,978	0,0145
Anzahl Impulse $D_{d,f}$		420491 (1050)	410029 (981)
Schneller Neutronenfluss $\phi_r$	[n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]	$2,80 (1,29) \cdot 10^4$	$2,86 (1,12) \cdot 10^4$

### 7.5.5. MCNP-Studie zur Neutronenabschirmung des Detektors

Die gemeinsame Abschirmung thermischer und schneller Neutronen erfordert den Einsatz unterschiedlicher Materialien. Es wurde eine Simulations-Studie mit MCNP durchgeführt, um die verschiedenen Kombinationsmöglichkeiten zu untersuchen. Ausgehend von dem Modell der PGNAA-Anlage wurde in den jeweiligen Simulationen das Abschirmmaterial verändert. Dabei wurde zwischen der seitlichen und frontalen Abschirmung unterschieden. Die Abschirmung nach vorn zum Messobjekt hin darf nicht durch zu dicke oder dichte Materialien erfolgen, weil ansonsten die Gamma-Strahlung zu stark abgeschirmt wird. Bei der seitlichen Abschirmung muss keine Rücksicht auf die Gamma-Strahlung genommen werden, es können auch Materialien wie Blei<sup>42</sup> oder Wolfram zum Einsatz kommen. Darüber hinaus wurden Simulationen mit und ohne Proben durchgeführt, da die Moderation der Neutronen durch den Probenkörper auch einen Einfluss auf den Neutronenfluss im Bereich des Detektors hat.

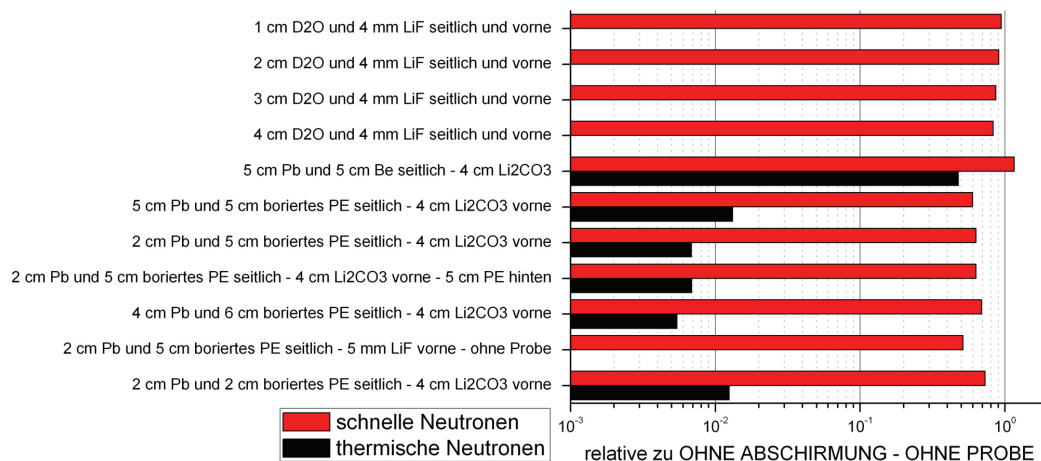
Zuerst wurde die Abschirmung thermischer Neutronen untersucht. Dafür wurde der Detektor-Kristall mit einer Kombination aus Cadmium, Blei und Lithiumfluorid abgeschirmt. In Abbildung 30 sind die Ergebnisse dieser Studie dargestellt. Die Bezeichnung „thermische Neutronen“ umfasst das Energiespektrum von 1  $\mu$ eV bis 100 meV und mit „schnelle Neutronen“ ist die Energie von 1 keV bis 14,1 MeV gemeint.

<sup>42</sup> Die Auswirkung auf das Prompt-Gamma-Spektrum durch die Aktivierung der Abschirmung wurde im Rahmen der MCNP-Studie nicht berücksichtigt.



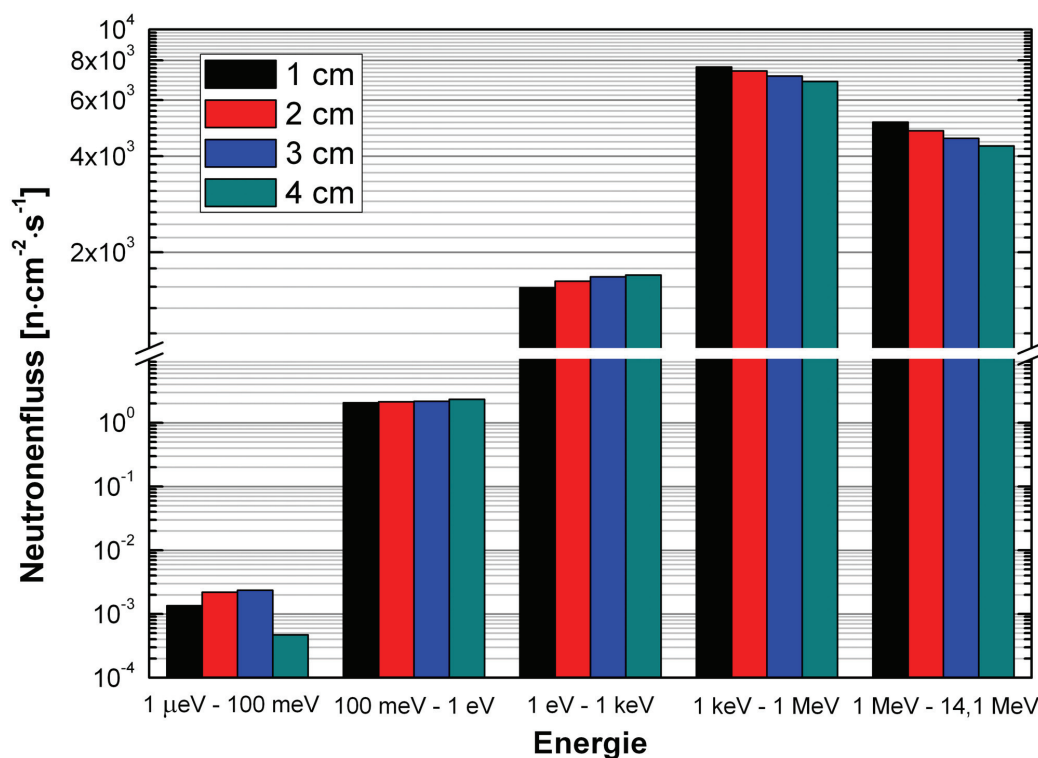
**Abbildung 30:** Sofern die Bezeichnung „ohne Probe“ fehlt, wurde die Simulation mit einer trockenen 38 kg schweren Betonprobe ( $1,6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) durchgeführt. Die Angabe „seitlich“ bezieht sich auf die Abschirmung der Manteloberfläche des Detektors, wohingegen mit der Bezeichnung „vorne“, die Detektorfrontfläche gemeint ist. Bei dem Lithium handelt es sich zu 100 % um  $^6\text{Li}$ . Die erstgenannten Materialien befinden sich am nächsten zum Germanium-Kristall. Alle Simulationen, wurden mit der JEFF-3.1 Datenbank für die Wirkungsquerschnitte berechnet.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Proben einen geringen Einfluss auf den thermischen und schnellen Neutronenfluss im Detektorbereich haben. Mit der Probe sinkt der schnelle Neutronenfluss im Detektor, wohingegen der thermische Neutronenfluss aufgrund der Moderation in der Probe steigt. Für die Abschirmung schneller Neutronen sind Materialien wie PE oder schweres Wasser notwendig. Im weiteren Teil der MCNP-Studie wurde eine Sandwich-Bauweise aus den jeweiligen Materialien untersucht. In Abbildung 31 sind die Ergebnisse dieser Simulationen dargestellt.



**Abbildung 31:** Die Beschriftung erfolgt analog zu Abbildung 30. In der Kombination von Beryllium und Blei kann sogar eine Erhöhung des schnellen Neutronenflusses beobachtet werden. Blei produzierte über die  $(n, 2n)$ -Reaktion schnelle Neutronen, die vom Beryllium in Richtung Detektor-Kristall reflektiert werden.

Die Ergebnisse für die Abschirmung schneller Neutronen sind ernüchternd. Keine der jeweiligen Kombinationen kann eine befriedigende Abschirmung ermöglichen. Beryllium, welches üblicherweise als Reflektormaterial eingesetzt wird, führt sogar zu einem Anstieg des schnellen Neutronenflusses. Die Simulationen mit dem schweren Wasser und dem LiF zeigen erstaunlicherweise auch nur eine geringe Wirkung. Es ist zwar eine Moderation der schnellen Neutronen zu erkennen, aber der Effekt ist selbst bei einer Dicke von 4 cm des schweren Wassers um den kompletten Detektor herum sehr gering. Die genauere Betrachtung der Neutronenmoderation zeigt, dass sich ein Energieschwerpunkt der Neutronen vor allem in den Bereich 1 eV bis 1 keV verschiebt. In Abbildung 32 sind die Neutronenflüsse im Detektor in Abhängigkeit von der Dicke der Schwer-Wasser-Abschirmung dargestellt. Die Simulationen wurden für eine Quellstärke von  $1 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  durchgeführt.



**Abbildung 32:** Neutronenflüsse im Germanium-Kristall in Abhängigkeit der Dicke der Schwer-Wasser-Abschirmung. Zusätzlich war bei allen Simulationen eine 4 mm dicke LiF Abschirmung zwischen Kristall und schwerem Wasser vorhanden.

Die Ergebnisse der MCNP-Studie zeigen, dass die Abschirmung schneller Neutronen verhältnismäßig kompliziert ist. Im Gegensatz zu den thermischen und epithermischen Neutronen ist bei den schnellen Neutronen eine angemessene Abschirmung durch Moderation nicht ohne Weiteres möglich. Eine zu dicke Abschirmung an der Frontseite des Detektors führt zu einer Erhöhung der Absorption der aus der Probe emittierten Gamma-Strahlung.

Es wurden auch Experimente mit den genannten Moderatormaterialien durchgeführt, um die MCNP-Ergebnisse nachvollziehen zu können. In Abschnitt 7.5.9 werden die experimentellen Ergebnisse dargestellt.

### 7.5.6. Abschirmung thermischer Neutronen

Erste Überlegungen sahen die Verwendung von natürlichem Lithium für die Abschirmung thermischer Neutronen vor. Das natürliche Lithium besteht zu 92,5 % aus dem Isotop  ${}^7\text{Li}$  und zu 7,5 % aus dem Isotop  ${}^6\text{Li}$  [Holleman2007]. Letzteres hat einen sehr großen totalen Wirkungsquerschnitt (siehe Abbildung 4), der hauptsächlich aus der  $(n, \alpha)$ -Reaktion (941 b für thermische Neutronen) herrührt:



Bei dieser Reaktion werden nur 3 Gamma-Linien mit sehr kleiner Intensität erzeugt, die im Untergrund des Prompt-Gamma-Spektrums untergehen. Aus diesen Gründen ist  ${}^6\text{Li}$  ein hervorragender Absorber für thermische Neutronen. Bei den Vorüberlegungen wurde allerdings übersehen, dass kommerzielle Lithium-Salze an  ${}^6\text{Li}$  abgereichert sind [Fluck1999].

Das durch den Neutroneneinfang entstehende Tritium kann mit dem umgebenden Material reagieren und dabei schnelle Neutronen mit bis zu 16 MeV erzeugen [Lone1980]. Die Neutronen entstehen sowohl durch Reaktionen mit dem Lithium  ${}^6\text{Li}({}^3\text{H}, n){}^8\text{B}$ ,  ${}^6\text{Li}({}^3\text{H}, n)2\cdot{}^4\text{He}$  als auch mit dem Fluor  ${}^{19}\text{F}({}^3\text{H}, n){}^{21}\text{Ne}$ ,  ${}^{19}\text{F}({}^3\text{H}, 2n){}^{20}\text{Ne}$  und  ${}^{19}\text{F}({}^3\text{H}, n){}^{17}\text{O} + {}^4\text{He}$ . Es entstehen pro  $10^6$  eingefangenen thermischen Neutronen 93 schnelle Neutronen. Diese können wiederum den Detektor-Kristall treffen und aktivieren. Im Verhältnis zu den schnellen Neutronen, die direkt vom Neutronengenerator ausgesandt werden und den Detektor erreichen, ist die Neutronenzahl dieser Einfangsreaktionen vernachlässigbar gering.

Das bei der Reaktion entstehende  $\alpha$ -Teilchen kann mit  ${}^7\text{Li}$  auf zwei verschiedene Weisen reagieren. Zum einen tritt die Reaktion  ${}^7\text{Li}(\alpha, n){}^{10}\text{B}$  mit einer Wahrscheinlichkeit von 94 % auf und zum anderen kann das  $\alpha$ -Teilchen mit der Restwahrscheinlichkeit elastisch an dem  ${}^7\text{Li}$  gestreut werden [Bichsel1957]. Die Reaktion  ${}^7\text{Li}(\alpha, \alpha'){}^7\text{Li}^*$  führt zu einem hochangeregten Zustand des  ${}^7\text{Li}$ -Kerns, der in Folge seiner Abregung eine signifikante Gamma-Strahlung mit 478 keV emittiert [Molnár2004, S. 127ff]. Diese Gamma-Linie weist, aufgrund der thermischen Bewegung des angeregten  ${}^7\text{Li}$ -Kerns, eine Dopplerverbreiterung von 7,6 keV auf. Der Peak bei 478 keV ist signifikant für den Einsatz einer auf Lithium basierenden Neutronenabschirmung.

Eine sehr kleine Menge  ${}^6\text{Li}$ -haltigen Materials wurde freundlicherweise vom Jülich Centre for Neutron Science (JCNS) zur Verfügung gestellt. Dieses Lithiumfluorid-Polymer war eine  $12,1 \times 12,5 \text{ cm}^2$  große Folie mit einer Dicke von 1,15 mm und einer Dichte von  $1,79 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ . Das Lithiumfluorid war zu 90 % mit  ${}^6\text{Li}$  angereichert. Zusätzlich gab es kleinere Reste desselben Materials, aber in nicht ausreichender Menge um die komplette Aluminium-Schutzkappe des Detektors einzukleiden. Für einige Versuchsmessungen wurde das Lithiumfluorid-Polymer verwendet, aber für die Abschirmung thermischer Neutronen reichte, wie oben gezeigt wurde, die vorhandene Menge nicht aus.

Die Beschaffung von  ${}^6\text{Li}$  ist ausgesprochen schwierig, da es auch zum Bau einer Fusionsbombe genutzt werden kann. Der Handel mit diesem Material ist daher sehr restriktiv. Es kamen nur zwei Anbieter von  ${}^6\text{Li}$ -haltigen Materialien in Betracht. Zum einen gibt es in Russland das „Petersburger Institut für Nuklear Physik“ und zum anderen in den USA das „Nationale Forschungszentrum in Oak Ridge“. Nachdem beide Hersteller kontaktiert wurden, bot sich erfreulicherweise vonseiten Oak Ridge die Möglichkeit 1 kg reines  ${}^6\text{Li}$ -Metall mit einem Gew.-% Isotopenanteil von 94,88 % zu

bekommen. Während der 3 monatigen Lieferprozedur wurde die Zeit genutzt, um andere Materialien für die Abschirmung thermischer Neutronen zu untersuchen.

Die Alternativen zu  ${}^6\text{Li}$  sind sehr rar. Alle anderen Kandidaten, die infrage kommen und hohe Einfangswirkungsquerschnitte aufweisen, emittieren eine Vielzahl an unerwünschten Photonen, mit teils sehr hohen Intensitäten. Zuerst wurde ein Cadmiumblech mit 0,5 mm Wandstärke an der Aluminium-Schutzkappe angebracht. Das Cadmium Isotop  ${}^{113}\text{Cd}$  hat mit 20600 b einen der größten Einfangswirkungsquerschnitte für thermische Neutronen [IAEA2007]. Die Haupt-Gamma-Linie liegt bei 558 keV, daneben sind noch 133 weitere Gamma-Linien bekannt. Es hat sich sofort gezeigt, dass Cadmium kein geeigneter Kandidat ist. Selbst bei geringer Neutronenquellstärke ( $1,3 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$ ) wurden so hohe Aktivitäten des Cadmiums erzeugt, dass kein brauchbares Prompt-Gamma-Spektrum gemessen werden konnte (siehe Anhang A3). Zudem ist Cadmium sehr giftig und umweltgefährlich. Als problematisch, sind auch Interferenzen mit dem Cadmium in den zu untersuchenden Proben anzusehen. Selbst bei der Verwendung von geringen Mengen für die Abschirmung, z. B. als cadmiumhaltige Farbe, würde die Nachweisempfindlichkeit für dieses Element erheblich abnehmen.

Als eine weitere Alternative wurde Stahl für die Neutronenabschirmung untersucht. Obwohl Stahl, der zu über 99 % aus Eisen besteht (siehe Tabelle 16), ein eher ungeeigneter Kandidat ist, wurde ein Stahlzylinder mit einer Wandstärke von 4,7 cm über die Aluminium-Kappe des Detektors geschoben. Es wurde damit auch das Ziel verfolgt, die Untergrundstrahlung des Cäsiums zu minimieren. Der Einfangswirkungsquerschnitt für thermische Neutronen von Eisen hat mit  $\sigma_c = 2,56 \text{ b}$  einen durchschnittlichen Wert für Metalle. Desweiteren ist der totale Schwächungskoeffizient für Gamma-Strahlung im Bereich von 661 keV nach der Gleichung 4.14  $\mu = 0,58 \text{ cm}^{-1}$ . Nach dem Absorptionsgesetz ergibt sich für den 4,7 cm dicken Stahlzylinder eine Abschwächung um den Faktor 15, wobei beachtet werden muss, dass die Frontfläche des Zylinders (Länge von 12,5 cm) offen war und so Cäsium-Strahlung direkt von vorne in den Detektor eindringen konnte. Die Ergebnisse der Versuchsmessung haben keine signifikante Minderung der Cäsium-Linie gezeigt und das Abschirmverhalten ist auch vernachlässigbar. Stahl ist daher ein ungeeigneter Kandidat für die Abschirmung des Detektors. Die hohe Zahl an Gamma-Linien durch die Eisen-Aktivierung führt zu einer Vielzahl von Interferenzen mit anderen Gamma-Linien über einen Energiebereich bis 9,3 MeV.

**Tabelle 16:** Zusammensetzung des für Abschirmung thermischer Neutronen genutzten Stahlzylinders.

Isotop	${}^{12}\text{C}$	${}^{55}\text{Mn}$	${}^{54}\text{Fe}$	${}^{56}\text{Fe}$	${}^{57}\text{Fe}$	${}^{58}\text{Fe}$
Molarer Massenanteil [%]	0,06	0,35	5,68	91,5	2,13	0,29

Ein weiterer interessanter Kandidat für die Abschirmung thermischer Neutronen ist Bor ( $\sigma_a = 763 \text{ b}$ ). Allerdings wird bei der Kernreaktion mit Bor, eine Gamma-Strahlung mit einer Energie von 472 keV emittiert, dessen Intensität höher ist als die 558-keV-Gamma-Linie von Cadmium. Nach den erfolglosen Messungen mit Cadmium wurden keine Versuche mit Bor unternommen.

### 7.5.7. Herstellung der ${}^6\text{Li}$ -Abschirmung

Das Ausgangsmaterial für die Herstellung der Neutronenabschirmung war reines  ${}^6\text{Li}$ -Metall, die genaue Elementanalyse befindet sich im Anhang A4. Da reines, metallisches, Lithium chemisch sehr reaktiv ist, kann es nicht direkt für die Abschirmung genutzt werden. Erst in einer Verbindung wie Lithiumfluorid ( $\text{LiF}$ ) oder Lithiumcarbonat ( $\text{Li}_2\text{CO}_3$ ) kann eine geeignete und handhabbare

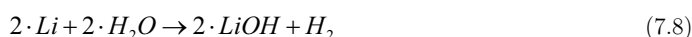
Abschirmung hergestellt werden. Fluor hat nur ein Isotop  $^{19}\text{F}$  und sein Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang ist sehr klein, sodass es sich schwer aktivieren lässt. Kohlenstoff und Sauerstoff sind Bestandteile der Messkammer und stellen ebenfalls kein Problem bei der PGNAA dar. Das Herstellungsverfahren wurde in den ersten Versuchsläufen mit natürlichem Lithium durchgeführt, um kein  $^6\text{Li}$  zu vergeuden. Der Ausgangsstoff für diese Probeläufe war metallisches Lithium-Granulat. Die folgenden Ausführungen beziehen sich auf den endgültigen Herstellungsprozess mit dem  $^6\text{Li}$ .

Das metallische  $^6\text{Li}$  wurde von Oak Ridge in Form von 10 bis 25 g Stückchen geliefert. In einem ersten Schritt wurden diese Stückchen mechanisch mit einem scharfen Messer zerkleinert. Das Granulat ähnliche  $^6\text{Li}$  wurde in deionisiertem und demineralisiertem Wasser aufgelöst (siehe Abbildung 33). Das Wasser zählt mit einem elektrischen Widerstand von  $18,3 \text{ M}\Omega\cdot\text{cm}$  und einem pH-Wert von genau 7 zu den hochreinen Wässern.



**Abbildung 33:** Das Foto zeigt die  $^6\text{Li}$ -Stücke in dem fast vollkommenen basischen Wasser. Da die Reaktion exotherm verläuft, wurde das Plastikgefäß in einem Eisbad permanent gekühlt. In dem Gefäß befanden sich zu Beginn der Prozedur ca. 400 ml hochreines Wasser. Es wurden nur vereinzelt  $^6\text{Li}$ -Stückchen hinzugegeben, da die Reaktion zu Anfang, bei einem pH-Wert von 7, sehr heftig ablief.

Die Reaktion des Lithiums mit dem Wasser bildet das Produkt Lithiumhydroxid:



Da bei dieser exothermen Reaktion neben Wasserdampf auch reiner Wasserstoff freigesetzt wird, wurde die Herstellungsprozedur in einem Abzug durchgeführt.

Mit zunehmender Lithiumhydroxid-Konzentration schwächte sich der Reaktionsprozess stark ab, bis schließlich das Wasser gesättigt war. Mit Indikator Papier wurde überprüft, ab wann das Wasser mit einem pH-Wert von 14 vollkommen basisch war.

Vor dem nächsten Schritt musste festgelegt werden, ob Lithiumfluorid oder Lithiumcarbonat hergestellt werden soll. Im Fall von Lithiumfluorid wurde zu dem mit Lithiumhydroxid gesättigten Wasser Flusssäure (HF) hinzugegeben. Der Umgang mit Flusssäure erfordert eine hohe Aufmerksamkeit, da die Säure ein starkes Kontaktgift ist. Sie wirkt stark ätzend auf die Haut und greift Glas stark an. Aus diesem Grund wurde der Herstellungsprozess in einem Polyethylengefäß durchgeführt. Die Reaktion zwischen der Flusssäure und dem Lithiumhydroxid verläuft exotherm



und war zu Beginn sehr heftig (siehe Abbildung 34). Die Produkte dieser Reaktion sind Lithiumfluorid und Wasser:



**Abbildung 34:** Das Foto zeigt die Hinzugabe von Flusssäure zu dem mit Lithiumhydroxid gesättigten Wasser. Aufgrund der exothermen Reaktion wurde das PE-Gefäß in Eiswasser gekühlt.

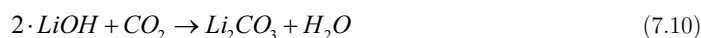
Dem Wasser wurde solange Flusssäure hinzugegeben, bis der pH-Wert bei 7 lag. Während der HF-Zugabe konnte anhand der milchigen Trübung direkt beobachtet werden, wie das LiF ausfiel.

Sobald das Wasser neutral bzw. leicht sauer war, wurde die Suspension aus  $\text{H}_2\text{O}$  und LiF in einer Nutsche abgesaugt und mit hochreinem Wasser gespült. Anschließend wurde das LiF zum Trocknen bei  $90^\circ\text{C}$  in einen Ofen gegeben.

Das Lithiumfluorid verblieb einige Tage in dem Trockenofen. Währenddessen wurde der Herstellungsprozess einige Male wiederholt, um genügend LiF zu erhalten. Pro Durchlauf wurden etwa 100 – 120 g LiF hergestellt.

Für die Neutronenabschirmung wurde eine Menge zwischen 800 und 1000 g angestrebt. Letztendlich wurden 1040 g hergestellt.

Für die Herstellung von  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  wurde dem mit Lithiumhydroxid gesättigten Wasser anstatt HF Kohlenstoffdioxid ( $\text{CO}_2$ ) aus einer Kohlensäureflasche hinzugegeben. Die Reaktion verläuft ebenfalls exotherm, allerdings viel langsamer:



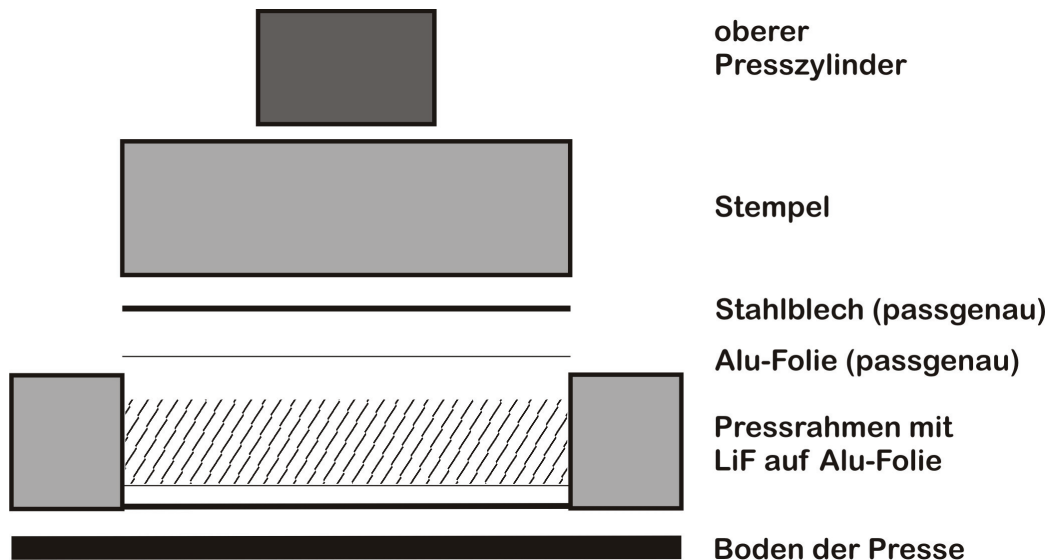
Der Herstellungsprozess wurde mehrere Male wiederholt und dadurch ca. 550 g  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  hergestellt.

Das getrocknete LiF bzw.  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  war in Pulverform nicht für die Abschirmung des Detektor-Gehäuses geeignet. Es musste erst noch in eine stabile Form gebracht werden. Das Pressen und Sintern in Plättchen bietet hierfür eine geeignete Lösung. Aufgrund der unterschiedlichen physikalischen und chemischen Eigenschaften von LiF und  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  stellte sich die Herstellung der Plättchen unterschiedlich schwierig da.

Im Vorfeld wurden natürliches LiF und  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  benutzt, um das Press- und Sinterverfahren zu optimieren. Lithiumfluorid hat einen Schmelzpunkt bei 1143 K bzw.  $870^\circ\text{C}$  und eine Dichte von



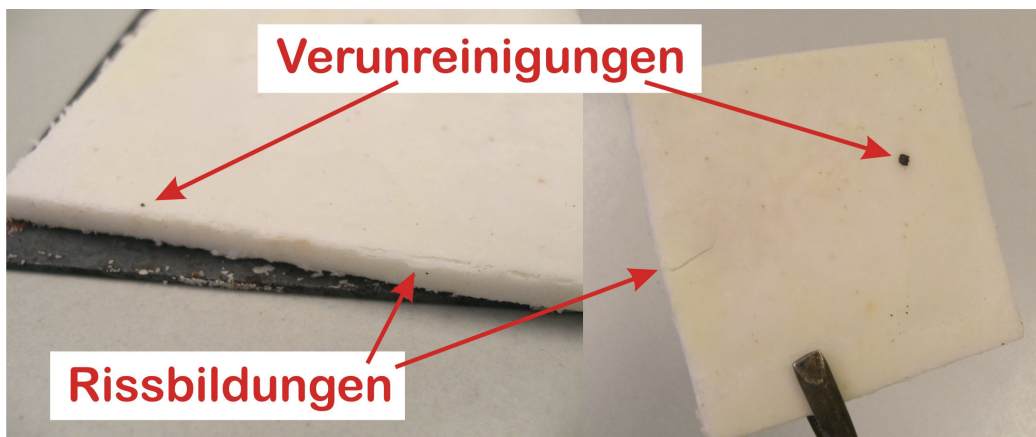
$2,64 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ . Um das LiF zu pressen, wurde eine Pressform aus Edelstahl angefertigt. Diese Form bestand aus einem Pressrahmen und einem Stempel mit entsprechendem Gegenstück (siehe Abbildung 35). Die Abmessung des Stempels war für Plättchen der Größe  $7 \times 7 \text{ cm}^2$  ausgelegt. Aus der Literatur [Krempel2004] war bekannt, dass Plättchen bis zu einer Größe von  $11 \times 11 \text{ cm}^2$  machbar sind. Die Größe sollte ein Kompromiss zwischen Aufwand für die Herstellung und Stabilität der Plättchen sein. Für die Einhausung der Detektorschutzhülle wurden 36 Plättchen benötigt.



**Abbildung 35:** Schematischer Aufbau für das Pressen der LiF-Plättchen.

In den Pressrahmen wurden ca. 35 g LiF Pulver gegeben und anschließend gepresst. Die ersten Pressversuche verliefen unbefriedigend. Als sehr problematisch stellte sich die Entnahme der gepressten Plättchen heraus. Zwar besaßen sie schon etwas Stabilität, aber es kam immer wieder zu Verkantungen und dadurch zu Beschädigungen der Plättchen. Es wurden verschiedene Pressen, mit unterschiedlichen Pressdrücken ausprobiert. So kam sowohl die 200-kN-Handpresse im Institut, als auch die 2000-kN-Hydraulikpresse der Zentralabteilung Technologie (ZAT) zum Einsatz, um die Presslinge so fest wie möglich zu bekommen. Dabei stellte sich heraus, dass mehr Druck nicht zu mehr Stabilität der gepressten Plättchen führt. Eine Verbesserung wurde vielmehr dadurch erreicht, dass oberhalb und unterhalb des LiF eine Aluminiumfolie und eine Stahlplatte ( $d = 1 \text{ mm}$ ) gelegt wurden. Die Stahlplatten und das dazwischen befindliche LiF konnten einfacher aus der Pressform entnommen werden. Die 5 mm dicken Presslinge wurden anschließend zum Sintern in einen Ofen gegeben. Der Sinterofen konnte bis auf  $1200 \text{ }^{\circ}\text{C}$  aufgeheizt werden und verfügte über eine elektronische Regelung der Temperatur. Da LiF sehr reaktiv ist, greift es bei hohen Temperaturen fast jedes Material an. Insbesondere die zum Pressen verwendeten Stahlplatten. Als Unterlage können eine Aluminiumoxidfolie oder ein Graphitbock dienen. Bei Versuchen mit Keramik hat sich gezeigt, dass die Reaktivität des LiF so stark ist und auch die Keramik zerstört. Es wurde letztendlich Graphit als Unterlage für die LiF-Plättchen benutzt. In mehreren Versuchen wurde die Aufheiz- und Abkühlphase optimiert. Dabei wurde das LiF auch über die Sintertemperatur von  $870 \text{ }^{\circ}\text{C}$  aufgeheizt. Der Sinterprozess stellte die größte Herausforderung bei der Produktion der LiF-Plättchen dar. Kleinste Verunreinigungen oder Inhomogenitäten bei den Presslingen führten beim Aufheizen zu

Rissen und zum Aufplatzen der LiF-Plättchen. Das Verfahren konnte erfolgreich durchgeführt werden, indem der Ofen über einen Zeitraum von 360 Minuten linear auf 790 °C geheizt und dann 300 Minuten auf der Temperatur gehalten wurde. Die Abkühlphase auf 50 °C benötigte wiederum 24 Stunden. In Abbildung 36 ist ein fertiges Produkt aus natürlichem LiF zu sehen.

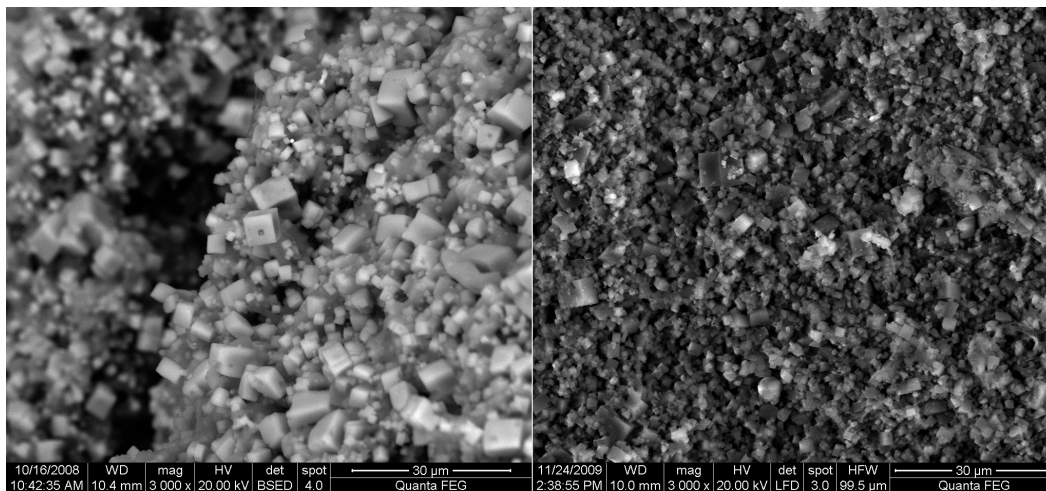


**Abbildung 36:** Durch den Sinter-Prozess waren die LiF-Plättchen auf  $6,9 \times 6,9 \text{ cm}^2$  geschrumpft. Bis auf einige Verunreinigungen und Rissbildungen war das Plättchen sehr stabil. Allein durch Handkraft konnte das Plättchen nicht zerbrochen werden.

Es wurden auch Versuche unternommen, Lithiumcarbonat zu sintern. Die Schmelztemperatur von  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  liegt bei 993 K bzw. 720 °C. Bei höheren Temperaturen von bis zu 810 °C hat sich das Material teilweise verflüchtigt, obwohl der Siedepunkt bei ca. 1310 °C liegt. Die gesinterten Plättchen waren sehr instabil, das  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  hatte eine Kristallstruktur gebildet und konnte schon mit geringem Druck pulverisiert werden.

Die Sinterversuche hatten gezeigt, dass eine Herstellung von LiF-Plättchen unter relativ hohem Aufwand möglich ist. Die Serienproduktion der LiF-Plättchen hätte bis zu einem Monat gedauert, da pro Durchlauf nur 4 Plättchen gesintert werden konnten. Zudem hätte die produzierbare Menge von 30 LiF-Plättchen alleine nicht gereicht um die Detektor-Schutzkappe einzuhausen und die Sinterung von  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  hat sich als nicht machbar herausgestellt. Die Suche nach neuen Lösungswegen führte zu einer interessanten Entdeckung. Ursprünglich war gedacht Wasserglas auf Lithiumbasis zu verwenden, um die Lithium-Plättchen auf einen dünnwandigen Aluminiumträger zu kleben, der über die Detektor-Kappe geschoben werden kann. Es hatte sich gezeigt, dass diese Lithiumwasserglaslösung auch als Bindemittel genutzt werden kann. Dazu wurde eine geringe Menge Wasserglas von etwa 10 ml in den Pressrahmen zu dem Lithiumpulver (ca. 35 g) gegeben. Durch das Pressen wurde das Wasserglas über das ganze Volumen des Plättchens verteilt. Der Pressling war nach dem entfernen der Stahlplättchen, zwischen denen sich die Lithium-Wasserglas-Paste befand, schon relativ stabil. Er wurde zum Trocknen in den Ofen gelegt und stufenweise bis auf 300 °C erhitzt. Die Temperatur wurde in 50 °C Schritten, über einem Zeitraum von 3 Tagen erhöht. Anschließend wurde der Trockenofen innerhalb von 24 Stunden wieder auf 50 °C runtergefahren. Nach diesem Prozess war das LiF-Plättchen bzw.  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ -Plättchen mechanisch so stabil, dass es für die Abschirmung brauchbar war. Es war sogar möglich die Plättchen mit einer Eisensäge zu teilen. Allerdings musste dabei vorsichtig umgegangen werden. Die LiF-Plättchen und  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ -Plättchen

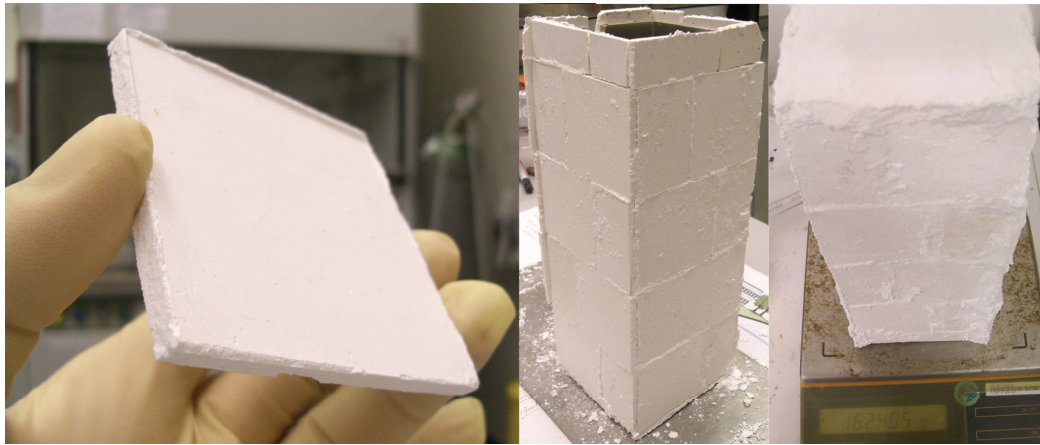
hatten jeweils eine Dicke von 5 mm und eine Dichte von  $1,38 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  bzw.  $1,35 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ . Die stichprobenmäßige Analyse der Oberfläche eines LiF-Plättchens mittels EDX<sup>43</sup> zeigte vereinzelte Kontaminationen mit Aluminium, Eisen, Kupfer, Kalzium, Chlor, Schwefel, Silizium, Chlor, Zink und Barium. In Abbildung 37 sind die Elektronenmikroskop-Aufnahmen des  $^6\text{LiF}$  dargestellt.



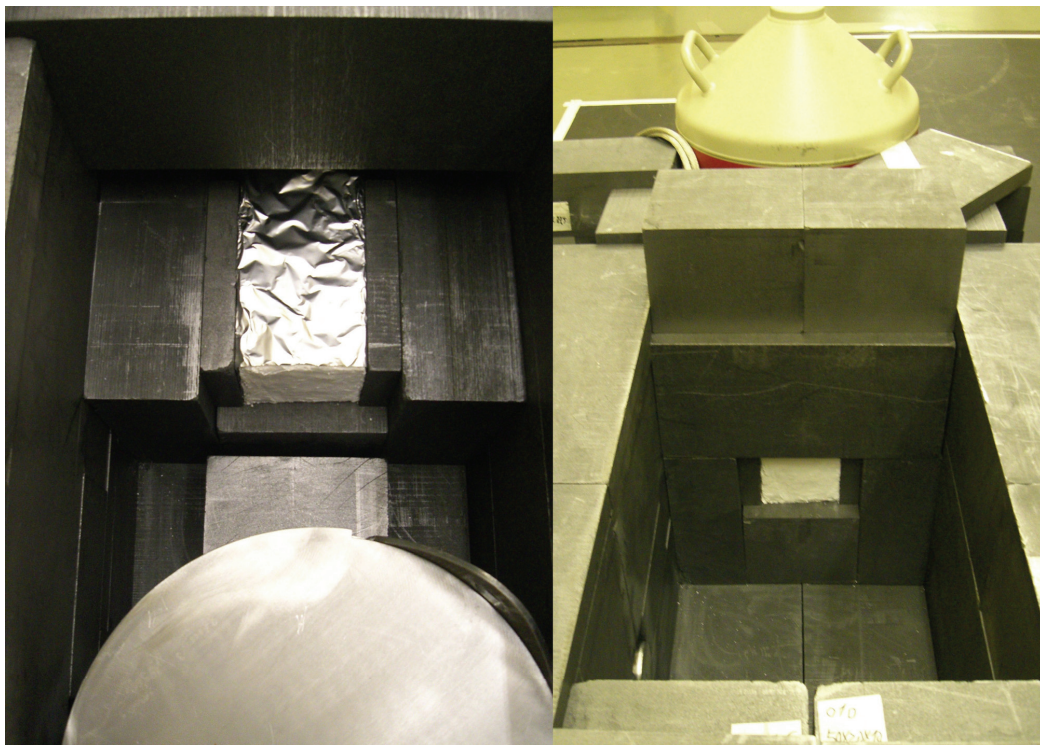
**Abbildung 37:** Auf dem linken Bild ist eine Vergrößerung der  $^6\text{LiF}$ -Polymer-Abschirmung des Jülich Centre for Neutron Science zu sehen. Zum Vergleich ist auf dem rechten Bild die Vergrößerung der selbst hergestellten  $^6\text{LiF}$ -Abschirmung gezeigt. Beide zeigen eine kubische Struktur ( $\text{NaCl}$ ) der LiF-Kristalle.

Es wurden 30 LiF-Plättchen und 10  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ -Plättchen hergestellt. Die LiF-Plättchen wurden unter Verwendung von Wasserglas auf die Außenseite eines 0,5 mm dicken Aluminiumträgers geklebt, auf die Frontseite wurden die  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ -Plättchen angebracht. Die Fugen wurden mit einer Paste aus Wasserglas und  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  geschlossen, sodass die Abschirmung bis auf die Rückseite komplett verschlossen war. In Abbildung 38 ist die fertige Abschirmung für thermische Neutronen dargestellt.

<sup>43</sup> EDX steht für energiedispersive Röntgenspektroskopie (Energy dispersive X-ray spectroscopy). Dabei werden die Atome einer Probe mit einem Elektronenstrahl angeregt und emittieren infolge dessen eine charakteristische Röntgenstrahlung.



**Abbildung 38:** Auf dem linken Foto ist ein LiF-Plättchen nach der Trocknung im Ofen zu sehen. In der Mitte ist die beinahe fertige Abschirmung gezeigt. Nach dem letzten Schritt, auf dem Foto rechts, hat die Neutronenabschirmung ein Gesamtgewicht von 1624 g, davon entfallen 358 g auf den Aluminiumträger und 1266 g auf die Lithium-Abschirmung.

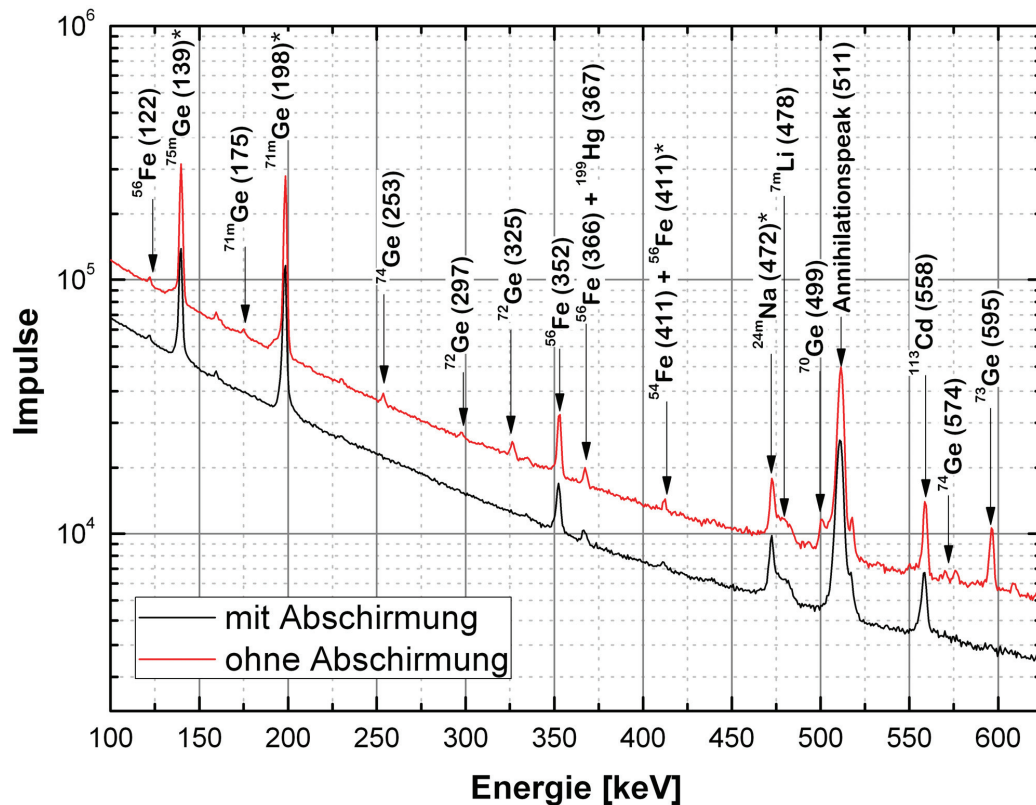


**Abbildung 39:** Auf dem linken Foto ist neben der Neutronenabschirmung auch ein Probenfass (unten) zu sehen. Das rechte Foto zeigt die offene Graphitkammer mit der verbauten Neutronenabschirmung. Unten links ist die Frontseite des Neutronengenerators zu erkennen.



Die Abschirmung wurde an den Außenseiten vor der Anbringung am Detektor mit einer 0,01 mm dicken Aluminiumfolie eingewickelt, um den Kontakt mit dem Graphit zu vermeiden. In Abbildung 39 ist die verbaute Neutronenabschirmung dargestellt.

Die ersten Messungen eines Probenfasses mit Beton und Spuren von Schwermetallen haben die Wirksamkeit der  ${}^6\text{Li}$ -Abschirmung für thermische Neutronen gezeigt. Die Kammer wurde über einen Zeitraum von 1917 s im Pulsmodus (1000-100-80-12) mit einer Quellstärke von  $2,1 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  bestrahlt. Der Detektor hat bei einer Totzeit von 52,01 % insgesamt 920 s lang das Prompt-Gamma-Spektrum gemessen. Im Fall des nicht abgeschirmten Detektors wurde das Probenfass über einen Zeitraum von 1785 s im Pulsmodus (1000-100-75-12) mit einer Quellstärke von  $1,5 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  bestrahlt. Parallel wurde das Spektrum mit einer Totzeit von 48,46 % über eine Messzeit von 920 s aufgenommen. In Abbildung 40 sind die beiden Prompt-Gamma-Spektren für den Energiebereich von 100 bis 625 keV einander gegenübergestellt.



**Abbildung 40:** Vergleich des Prompt-Gamma-Spektrums eines betonierten Stahlfasses, mit und ohne thermische Neutronenabschirmung. Die mit einem \* gekennzeichneten Gamma-Linien entstammen Reaktionen mit schnellen Neutronen. Der Peak bei 478 keV ist in beiden Spektren vorhanden, weil sich im Fall ohne Abschirmung die  ${}^6\text{Li}$ -Folie des JCNS vor dem Detektor befand. Diese konnte nur einen sehr kleinen Teil der thermischen Neutronen abschirmen.

Es ist sehr gut zu sehen, wie die Prompt-Gamma-Linien aus der thermischen Aktivierung von Germanium mit der  ${}^6\text{Li}$ -Abschirmung verschwinden. Die verminderte Zählrate ist durch die

Abschwächung der Gamma-Strahlung durch die Abschirmung zu erklären. Nach dem Lambert-Beerschen Gesetz<sup>44</sup> ergibt sich eine Abschwächung bei 661 keV für das 5 mm dicke LiF-Plättchen von 7,9 % ( $\mu = 0,1899 \text{ cm}^{-1}$  [Krieger2007]). Desweiteren wird der Untergrund dadurch gemindert, dass die Prompt-Gamma-Linien von Germanium nicht mehr im Gamma-Spektrum enthalten sind.

### 7.5.8. Kristallschäden durch Kernreaktionen mit schnellen Neutronen

Die Aktivierung der Proben hängt primär von der Stärke der Neutronenquelle ab. Je höher die Quellstärke ist, umso höher ist der Aktivierungsgrad, aber durch die erhöhte Aktivität erhöht sich auch die Totzeit des Spektrometers. In den vorangegangenen Kapiteln wurden die verschiedenen Abhängigkeiten untersucht und beschrieben. Besonders wurde darauf hingewiesen, dass der Detektor im Dauerbetrieb (CW-Modus) überlastet ist und kein auswertbares Prompt-Gamma-Spektrum mehr registrieren kann. Die leere Graphitkammer wurde in einer Messkampagne sowohl mit steigender Quellstärke im Pulsmodus, als auch mit minimaler Quellstärke im CW-Modus charakterisiert. Die Messzeit betrug jeweils 1200 s. Bei einer Repetitionszeit von 1 ms und einer Pulslänge von 35  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 42 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,2 \cdot 10^6$  Pulsen. In der Abbildung 41 ist der Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums in dem Energiebereich von 100 bis 1100 keV dargestellt. Im CW-Modus fallen vor allem die asymmetrischen Gamma-Linien bei 596, 692 und 1039 keV auf, die durch (n, n')-Reaktionen der schnellen Neutronen mit dem Germanium verursacht werden [Molnár2004, S. 95]. Diese Gamma-Linien werden als die sogenannten „Germanium-Dreiecke“ bezeichnet. Ihre asymmetrische Form mit der verschmierten Flanke zum hochenergetischen Bereich hin erhalten die Peaks dadurch, dass die schnellen Neutronen an dem Germanium inelastisch streuen und die Atome aus ihren Gitterplätzen verrücken. In Abbildung 42 ist der Peak bei 596 keV gesondert dargestellt. Der Peak wurde mit einer asymmetrischen Gaußverteilung gefittet:

$$y = y_0 + A \frac{1}{1 + \exp\left(-\frac{x - x_c + w_1/2}{w_2}\right)} \cdot \left(1 - \frac{1}{1 + \exp\left(-\frac{x - x_c + w_1/2}{w_3}\right)}\right) \quad (7.11)$$

Die Fit-Parameter sind in der Abbildung 42 angegeben.

---

<sup>44</sup>  $I = I_0 \cdot \exp(-\mu \cdot d)$ ;  $\mu$  ist der Schwächungskoeffizient nach Gleichung 3.14 und  $d$  die Durchstrahlungsdicke.

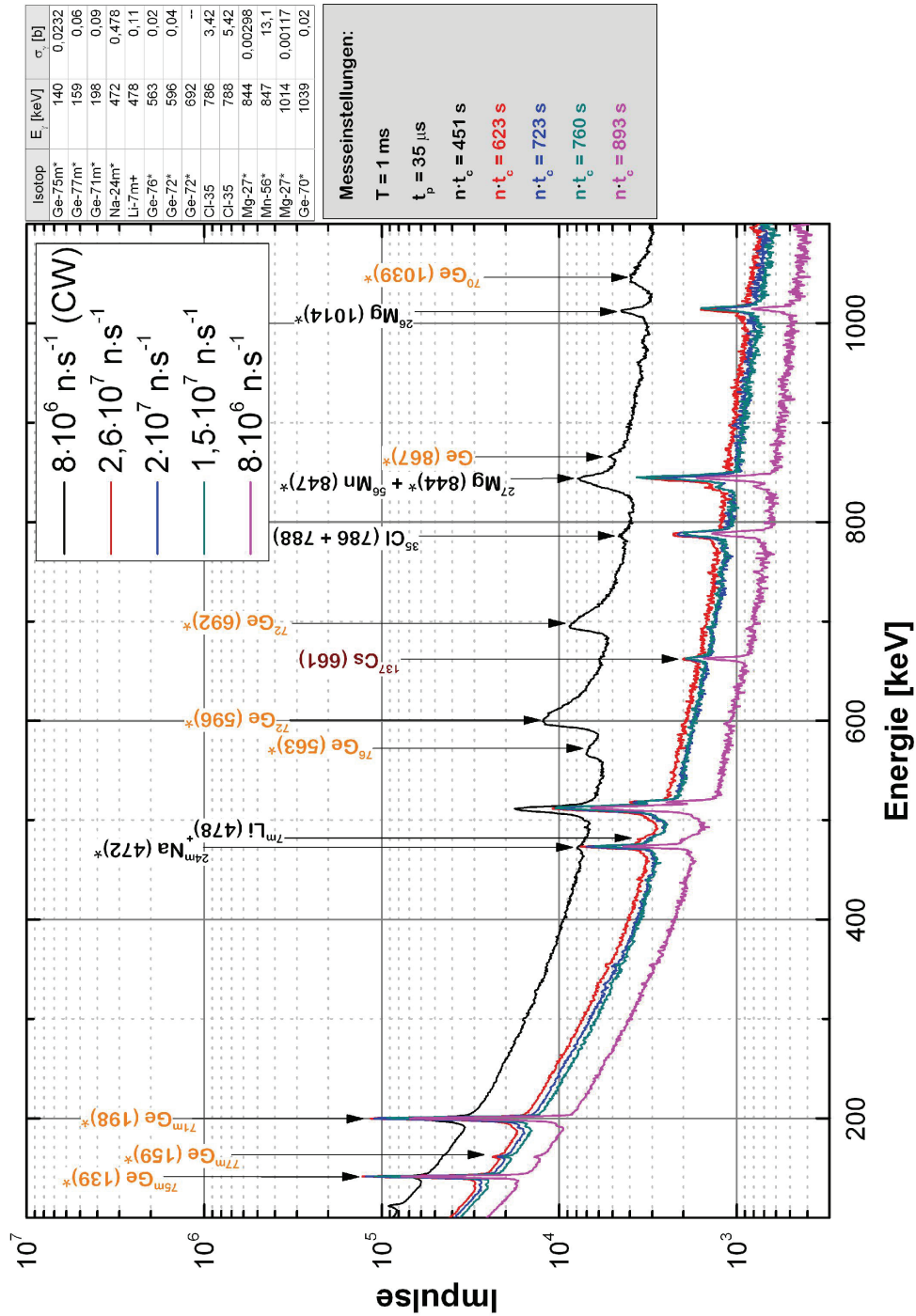
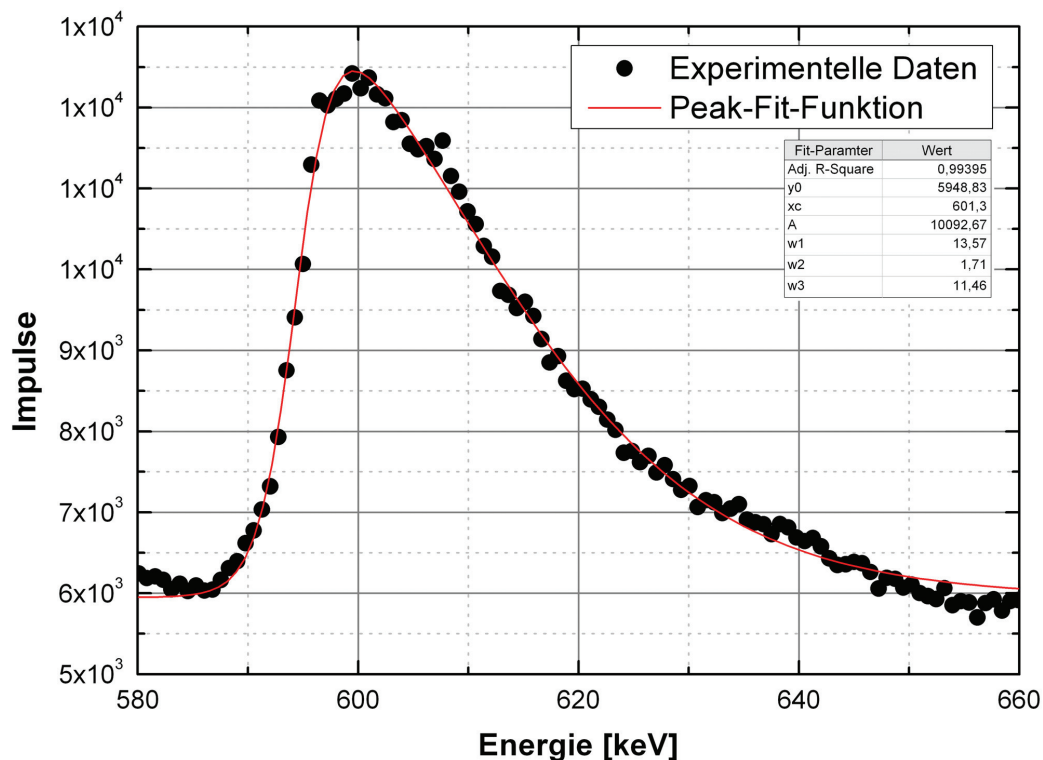


Abbildung 41: Prompt-Gamma-Spektren der leeren Graphitkammer. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen und die Gamma-Linie bei 478 keV aus der  ${}^7\text{Li}(\alpha, \alpha'){}^7\text{mLi}$ -Reaktion.



**Abbildung 42:** Germanium-Peak bei 596 keV. Aufgenommen bei der Bestrahlung der leeren Messkammer im CW-Modus.

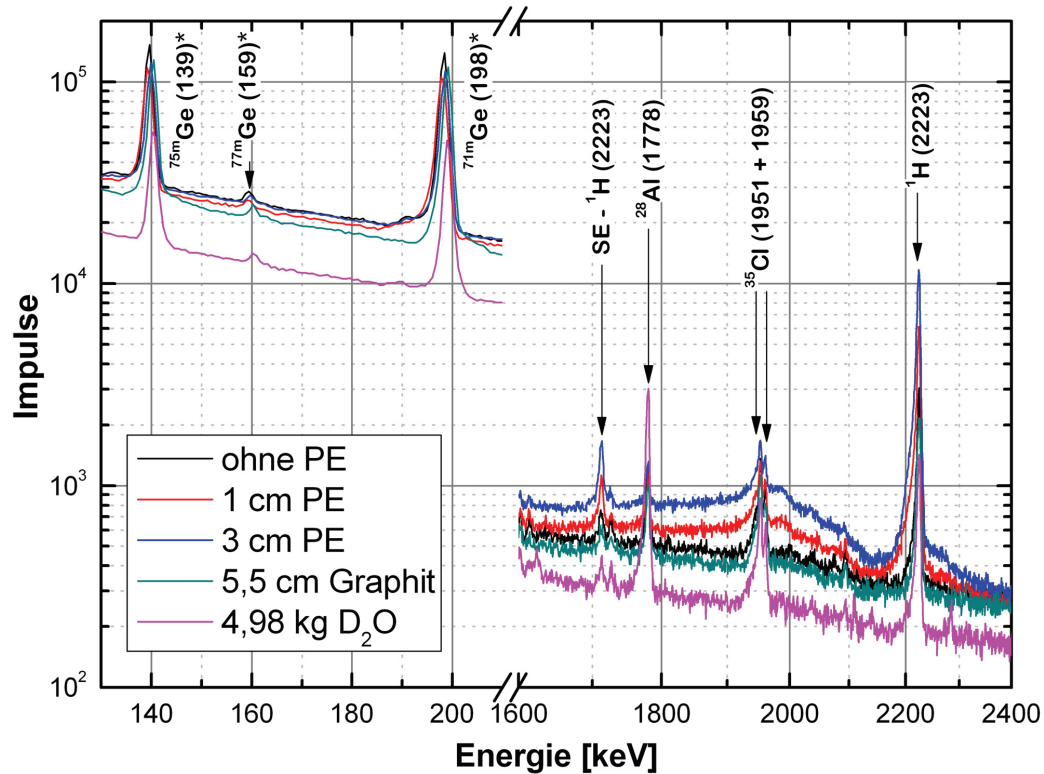
### 7.5.9. Abschirmung schneller Neutronen

Die  ${}^6\text{Li}$ -Abschirmung funktionierte so gut, dass eine Aktivierung des Germaniums mit thermischen Neutronen nicht mehr beobachtet werden konnte. Für die Abschirmung schneller Neutronen ist  ${}^6\text{Li}$  allerdings ungeeignet. Um den Fluss schneller Neutronen zu verringern, ist ein Moderator notwendig. Es kommen im Wesentlichen wasserstoffhaltige Materialien wie Polyethylen (PE), Graphit mit über 99 % Kohlenstoff und schweres Wasser mit einem hohen Anteil an Deuterium infrage. Die schnellen Neutronen treffen den Germanium-Kristall hauptsächlich von vorne, da seitlich mindestens 40 cm Graphit vorhanden ist. Die Materialien für eine zusätzliche Abschirmung wurden direkt vor dem Detektor angebracht.

PE ( $\text{C}_2\text{H}_4$ ) ist ein kostengünstiges Material und einfach zu beschaffen. Seine beiden Bestandteile, Kohlenstoff und Wasserstoff sind hervorragende Moderatoren. Zudem hat PE mit  $0,94 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  eine relativ geringe Dichte und lässt so die Gamma-Strahlung von der aktivierten Probe fast ungehindert durch. Ein großer Nachteil für die Verwendung von PE entsteht durch die leichte Aktivierung von Wasserstoff. Für die Moderation der schnellen Neutronen zwischen 1 und 14 MeV ist eine entsprechende Dicke des Polyethylens notwendig, damit sie anschließend von dem  ${}^6\text{Li}$ -Absorber aufgehalten werden können. Andernfalls können die Neutronen sogar mit einer Energie auf den Germanium-Kristall treffen, bei der die jeweiligen Wechselwirkungsquerschnitte Resonanzen haben.



In Abbildung 43 sind Ausschnitte von Prompt-Gamma-Spektren mit verschiedenen Moderatoren dargestellt.



**Abbildung 41:** Der Ausschnitt im niedrigen Energiebereich zeigt die Reaktion von Germanium mit schnellen Neutronen (durch \* gekennzeichnet). Im Bereich um 2 MeV ist vor allem die Aktivität von Wasserstoff zu beobachten, die bei 3 cm PE so hoch ist, dass die Compton-Kante sehr gut zu erkennen ist. Die leere Messkammer wurde im Fall der D<sub>2</sub>O-Abschirmung mit einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus (1000-100-72-8) bestrahlt. In den anderen Fällen hat der NG eine Quellstärke von  $2,1 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus (1000-100-80-12). Alle Spektren wurden über einen Totzeit korrigierte Messzeit von 920 s aufgenommen.

Die Abschirmung der schnellen Neutronen durch das Polyethylen zeigt nur eine geringe Wirkung, darüber hinaus wird das Gamma-Spektrum durch die Wasserstoff-Aktivität stark beeinflusst. Der erhöhte Untergrund verschlechtert die Nachweisempfindlichkeit des Systems.

Der Graphitblock zeigte, trotz seines Durchmessers von 5,5 cm und Fläche von  $15 \times 15 \text{ cm}^2$ , kaum eine Wirkung auf die Abschirmung der schnellen Neutronen. Es konnte nur eine Abschwächung der Gamma-Strahlung beobachtet werden. Das Peak-zu-Untergrundverhältnis der beiden Germanium-Aktivitäten ist in etwa genauso groß wie ohne Abschirmung (siehe Tabelle 17). Diese Tatsache ist erstaunlich, da das Bremsvermögen von Graphit größer als von schwerem Wasser ist (siehe Tabelle 8 in Abschnitt 7.3).

**Tabelle 17:** *Peak-zu-Untergrundverhältnis von signifikanten Gamma-Linien für verschiedene Abschirmungen schneller Neutronen.*

	$^{75}\text{mGe}$ (139 keV)	$^{71}\text{mGe}$ (198 keV)	$^1\text{H}$ (2223 keV)	SE- $^1\text{H}$ (1712 keV)
<b>Ohne Abschirmung</b>	9,8 (5)	19,2 (8)	79,9 (12)	2,8 (5)
<b>1 cm PE</b>	9,1 (5)	16,3 (7)	135,3 (15)	4,9 (7)
<b>3 cm PE</b>	7,9 (3)	15,6 (7)	404,6 (23)	10,2 (9)
<b>5,5 cm Graphit</b>	10,1 (5)	19,5 (8)	74,5 (13)	2,4 (5)
<b>4,98 kg D<sub>2</sub>O</b>	7,2 (3)	13,7 (6)	58,6 (11)	2,3 (5)

Bei der Abschirmung mit schwerem Wasser handelte es sich um einen aus Aluminium gefertigten hohlwandigen Behälter, der passgenau über die  $^6\text{Li}$ -Abschirmung geschoben werden konnte. Der Behälter wurde speziell für diesen Zweck von der Zentralabteilung Technologie gefertigt. Erste Planungen sahen eine Fertigung aus Teflon<sup>®</sup> ( $\text{C}_2\text{F}_4$ ) vor, allerdings kann dieses Material nicht zu einem hohlwandigen Behälter der geforderten Größe zusammengeklebt werden. Als Alternativlösung wurde Aluminium ausgewählt, obwohl bekannt war, dass Aluminium sich relativ gut aktivieren lässt. Dafür konnte sichergestellt werden, dass der Behälter auch unter Belastung, wenn er seitlich liegt, seine Dichtigkeit behält. Die Wandstärke des Behälters betrug 2 mm und der Abstand zwischen der Innen- und Außenwand hatte eine Länge von 2 cm. Dadurch wurde der Detektor-Kristall sowohl nach vorne, als auch zu den Seiten hinreichend von dem schweren Wasser abgedeckt. Das Leergewicht des Behälters betrug 2,4 kg. Das schwere Wasser wurde freundlicherweise von der Zentralabteilung Forschungsreaktoren (ZFR) zur Verfügung gestellt, es enthielt eine relativ geringe Kontamination von Tritium (siehe Anhang A5).

Die Abschirmung der schnellen Neutronen mit dem schweren Wasser hat zwar funktioniert, aber die Aktivierung des Germaniums konnte leider nicht ausreichend reduziert werden. Zudem ist die Aktivierung des Aluminiumbehälters nachteilig. Wie in Abbildung 43 zu sehen ist, war das Signal von  $^{28}\text{Al}$  mehr als dreimal so hoch, wie ohne Abschirmung.

Für die Abschirmung schneller Neutronen hat sich zwar  $\text{D}_2\text{O}$  als beste Lösung erwiesen, aber das Konzept einer geeigneten Abschirmung für schnelle Neutronen muss zukünftig überarbeitet werden, um eine Aktivierung des Germaniums zu verhindern. Vielleicht reicht ein einfacher Behälter aus Teflon<sup>®</sup>, gefüllt mit  $\text{D}_2\text{O}$  direkt vor dem Detektor aus, da der schnelle Neutronenfluss zu den Seiten hin, aufgrund der großen Menge an Graphit, wesentlich geringer ist.

Die weiteren Experimente im Rahmen dieser Arbeit wurden ohne eine Abschirmung der schnellen Neutronen durchgeführt.



# Kapitel 8

## Energie und Effizienzkalibrierung

### Zusammenfassung

Die Energiekalibrierung des Spektrometers ist für den qualitativen Nachweis der Elemente in der unbekannten Probe notwendig. Desweiteren ist die Photopeak-Effizienz eine der wichtigsten Kenngrößen des Spektrometers. Sie ist sowohl für die quantitative Analyse der Probe, als auch für die Berechnungen des mittleren thermischen und schnellen Neutronenflusses in der Probe, von entscheidender Bedeutung. Mit dem PGNA-Prototypsystem wurden der Inhalt von 25 l und 50 l Probenfässer charakterisiert. Die absolute Photopeak-Effizienz ist in beiden Fällen unterschiedlich groß. Da keine kalibrierten Gammaquellen für solche Volumina zu Verfügung standen, schon gar nicht um die Effizienz bis 12 MeV zu bestimmen, wurden Simulationen für die Berechnung der Photopeak-Effizienz durchgeführt. In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der verschiedenen Fälle präsentiert und diskutiert.

### 8.1. Energiekalibrierung

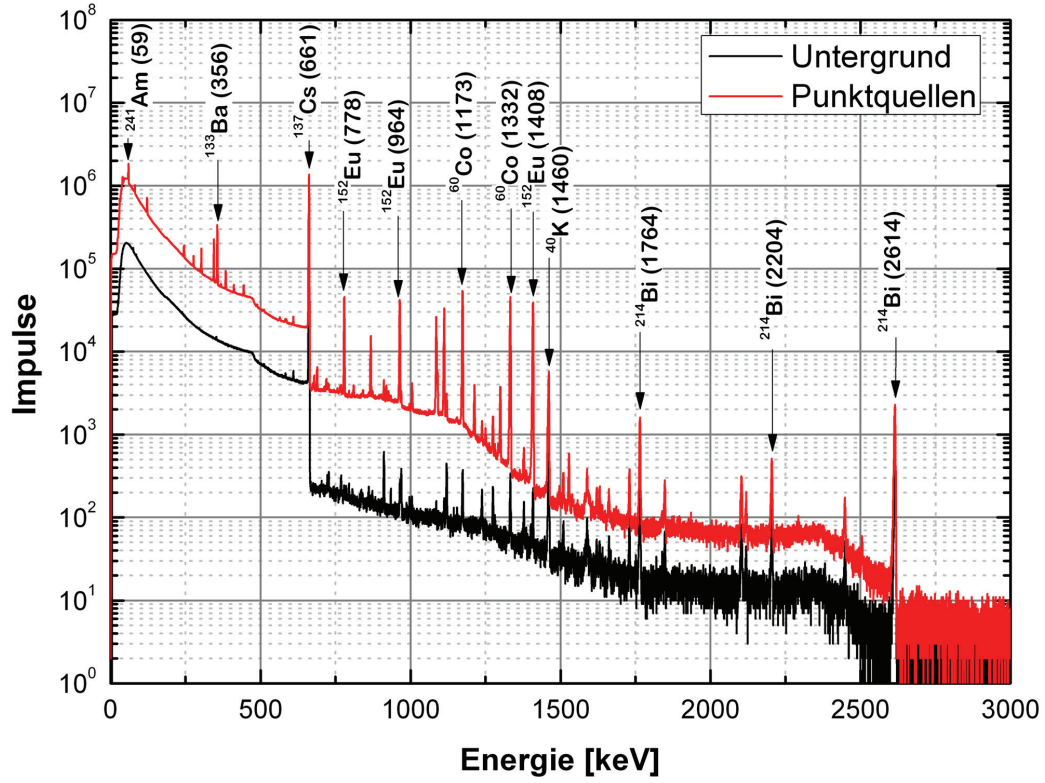
Da das Eisen bis 9,3 MeV Gamma-Linien mit hohen Intensitäten besitzt, wurde für die Energiekalibrierung des Spektrometers das Prompt-Gamma-Spektrum eines 25-l-Stahlfasses benutzt. Durch die Auswertung des Spektrums wurden die bekannten Prompt-Gamma-Energien den Kanalnummern des Vielkanalanalysators zugeordnet. Im Rahmen einer Diplomarbeit [Rose2009] wurde die Energiekalibrierung mit dem Prompt-Gamma-Spektrum einer NaCl-Probe wiederholt,  $^{35}\text{Cl}$  emittiert Prompt-Gammas mit einer Energie bis zu 8,6 MeV.

### 8.2. Untergrundspektrum und Punkteffizienz bis 3 MeV

Die Messung des Untergrundspektrums der leeren Graphitkammer wurde ohne Neutronenemission aufgenommen. Wie in Abschnitt 7.1.4 beschrieben, ist die Experimentierhalle mit  $^{137}\text{Cs}$  kontaminiert, deswegen ist in dem Untergrundspektrum ein sehr starkes Signal von  $^{137}\text{Cs}$  zu beobachten. Die Cäsium-Strahlung trifft von allen Seiten auf die Graphitkammer und damit auch auf den Detektor. Aus diesem Grund wurde der Detektor auch im Bereich des Vorverstärkers mit Graphit verbaut. Obwohl das Cäsium-Signal den Untergrund erhöht und damit die Nachweisempfindlichkeit des Systems stört, kann dieser Gegebenheit doch etwas Positives abgewonnen werden. Es ist dadurch ein Strahlungsumfeld vorhanden, wie es auch bei der Messung realer radioaktiver Abfallfässer<sup>45</sup> anzutreffen wäre. Für die Effizienzkalibrierung wurde ein Spektrum der Standardquellen  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{60}\text{Co}$  und  $^{152}\text{Eu}$  in Punktgeometrie aufgenommen (Angaben über die Aktivitäten der Quellen befinden sich im Anhang A6). In Abbildung 44 sind das Untergrundspektrum und das Spektrum der Punktquellen dargestellt. Das Signal bei 1460 keV stammt von  $^{40}\text{K}$ , einem radioaktiven Isotop des Kaliums. Es kommt zu 0,012 % im natürlichen Kalium vor, das wiederum mit bis zu 0,1 Gew.-% Bestandteil des Barytbetons der Experimentierhalle ist. Neben dem  $^{40}\text{K}$ -Signal sind mehrere Gamma-Linien der radioaktiven Zerfallsreihen, wie z. B.  $^{214}\text{Bi}$  im Untergrundspektrum enthalten.  $^{214}\text{Bi}$  ist ein Zerfallsprodukt von  $^{222}\text{Rn}$ , das in der Umwelt allgegenwärtig ist.

---

<sup>45</sup> Bei realen schwachradioaktiven Abfällen sind zusätzliche Gamma-Linien von z. B.  $^{60}\text{Co}$  vorhanden.



**Abbildung 44:** Das Untergrundspektrum wurde über eine Messzeit von 68400 s (LT) aufgenommen. Die Punktquellen wurden im Zentrum der Messkammer platziert und das Spektrum 344838 s (LT) lang gemessen.

Für die Energie- und Effizienzkalibrierung des Spektrometers im Bereich bis 3 MeV wurden das Spektrum der Standardquellen  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{60}\text{Co}$  und  $^{152}\text{Eu}$  im Zentrum der Messkammer, 35 cm entfernt von der Frontfläche des Detektors, gemessen. Die verwertbaren Gamma-Linien reichen bis zu einer Energie von 1,4 MeV. Da die Messungen vor der Fertigstellung der  $^6\text{Li}$ -Abschirmung durchgeführt wurden, mussten die Abschwächungen durch den Aluminium-Träger und das LiF-Plättchen gemäß dem Lambert-Beerschen Gesetz berücksichtigt werden.

In Abbildung 45 ist die Energieabhängigkeit der Photopeak-Effizienz mit und ohne  $^6\text{Li}$ -Abschirmung dargestellt. Die experimentellen Daten wurden mit einer exponentiellen Polynomfunktion 6ter Ordnung gefittet [Kis1998]:

$$\varepsilon = \exp\left(\sum_{i=-3}^2 a_i \cdot E_{\gamma}^{i-1}\right) \quad (8.1)$$

Die Fit-Parameter sind in Abbildung 45 angegeben.

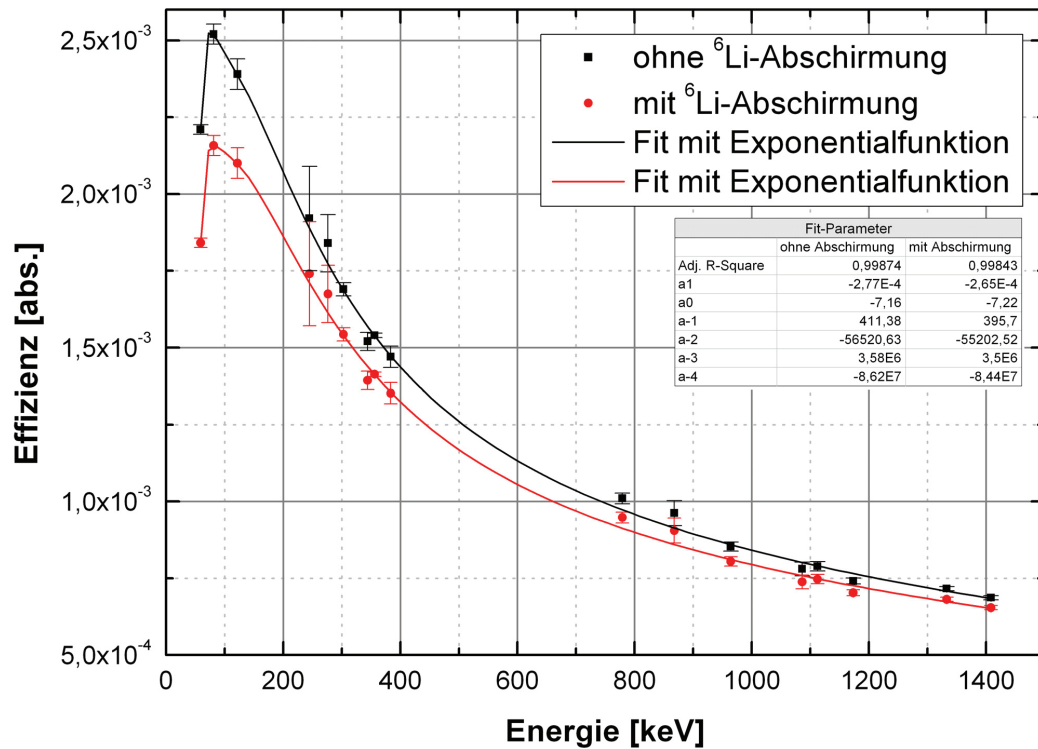
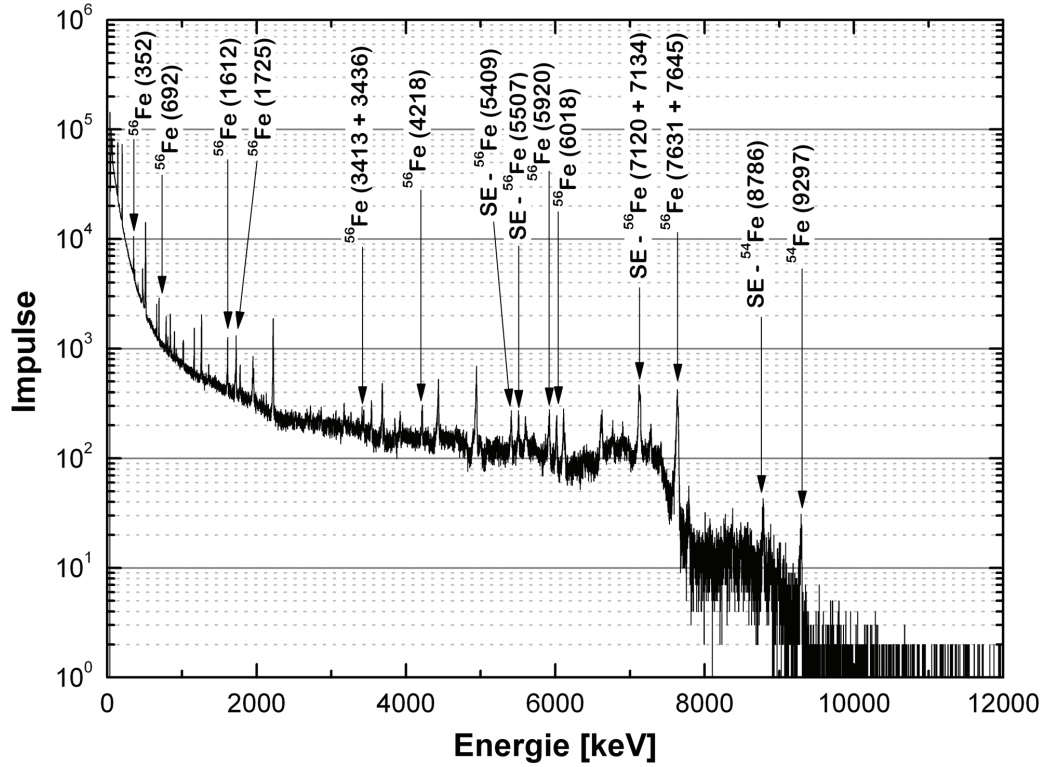


Abbildung 45: Berechnete Effizienzkurven aus den Messungen der Standardpunktquellen, die 35 cm Abstand zum Detektor im Zentrum der Messkammer lagen.

### 8.3. Bestimmung der Detektor-Punkteffizienz bis 10 MeV

Die Photopeak-Effizienz für eine Punktquelle im Mittelpunkt der Messkammer ist bis 1,4 MeV bekannt. Um die Effizienz für Gamma-Energien bis 10 MeV zu bestimmen, wurde das Prompt-Gamma-Spektrum eines leeren 25-l-Stahlfasses über eine Messzeit von 1284 s aufgenommen. Dafür wurde das Fass mit einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus bestrahlt, wobei die Pulsperiode  $T$  bei 2 ms und die Pulslänge  $t_p$  bei  $180 \mu\text{s}$  lag. Die Gamma-Linie mit der höchsten Energie liegt für Eisen bei 9,3 MeV. In Abbildung 46 ist das Prompt-Gamma-Spektrum des leeren Stahlfasses dargestellt, wobei einige ausgewählte Gamma-Linien hervorgehoben wurden.



**Abbildung 46:** Das Prompt-Gamma-Spektrum des leeren 25-l-Stahlfasses wurde bei einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsbetrieb über einen Zeitraum von 3600 s aufgenommen (siehe Abschnitt 10.3.1).

Wie in Gleichung 5.3 zu sehen ist, hängt die Netto-Peakfläche der Gamma-Linien unter anderem von der Photopeak-Effizienz des Detektors ab. Die Netto-Peakflächen der Prompt-Gamma-Linien von  $^{54}\text{Fe}$  und  $^{56}\text{Fe}$  sind miteinander korreliert und können mit folgender Beziehung direkt verglichen werden:

$$\frac{P_{\gamma,1}}{P_{\gamma,2}} = \frac{\sigma_{\gamma,1}^z \cdot \varepsilon_{\gamma,1}}{\sigma_{\gamma,2}^z \cdot \varepsilon_{\gamma,2}} \quad (8.2)$$

Die Gleichung kann nach der Photopeak-Effizienz umgestellt werden und anstelle von  $\varepsilon_{\gamma,1}$ ,  $P_{\gamma,1}$  und  $\sigma_{\gamma,1}^z$  können Werte einer Referenz-Gamma-Linie  $\varepsilon_{\gamma,\text{ref}}$ ,  $P_{\gamma,\text{ref}}$  und  $\sigma_{\gamma,\text{ref}}^z$  eingesetzt werden, wobei  $\varepsilon_{\gamma,\text{ref}}$  aus der Effizienzkurve für die Punktquelle entnommen wird. Anschließend kann die Effizienz  $\varepsilon_{\gamma,n}$  einer beliebigen Gamma-Linie von Eisen mit bekannten  $P_{\gamma,n}$  und  $\sigma_{\gamma,n}^z$  berechnet werden:

$$\varepsilon_{\gamma,n} = \frac{P_{\gamma,n}}{P_{\gamma,\text{ref}}} \cdot \frac{\sigma_{\gamma,\text{ref}}^z}{\sigma_{\gamma,n}^z} \cdot \varepsilon_{\gamma,\text{ref}} \quad (8.3)$$

Für alle bekannten Gamma-Linien des Eisens wird bei gleichbleibender Referenz-Effizienz  $\varepsilon_{\gamma,\text{ref}}$  die Effizienz  $\varepsilon_{\gamma,n}$  berechnet. Das Ergebnis ist eine Effizienzkurve, die einen Schnittpunkt mit der Effizienzkurve für die Punktquelle im Punkt der Referenz-Effizienz hat. Dieser Vorgang wird für alle



Gamma-Linien des Eisens im Energiebereich bis 1,4 MeV wiederholt, wobei die Photopeak-Effizienz entsprechend der zu berechnenden Gamma-Linie geändert wird.

Nachdem alle Berechnungen durchgeführt wurden, ist das Ergebnis eine quadratische Matrix, deren Zeilen- und Spaltenanzahl der Anzahl der Prompt-Gamma-Linien des Eisens bis 1,4 MeV entsprechen.

Die berechneten Photopeak-Effizienzwerte weichen von den Werten für eine Punktquelle ab, weil für die Betrachtung einer großvolumigen Probe, wie dem Stahlfass, zusätzlich ein Geometriefaktor<sup>46</sup>  $\alpha_i$  berücksichtigt werden muss:

$$\alpha_i = \frac{\mathcal{E}_{\gamma,ref}}{\mathcal{E}_{\gamma,n}} \quad (8.4)$$

Dieser Faktor wurde für alle Photopeak-Effizienzen  $\mathcal{E}_{\gamma,ref}$  und gleichzeitiger Variation aller Photopeak-Effizienzen  $\mathcal{E}_{\gamma,n}$  von Eisen berechnet [Rose2009]. Die Ergebnisse der Geometriefaktoren wurden mit einer logarithmischen Funktion gefittet. Durch eine Extrapolation der Ergebnisse über 1,4 MeV hinaus konnten die Effizienzen im hochenergetischen Bereich bestimmt werden. Die ermittelten Geometriefaktoren können für die direkte Berechnung der jeweiligen Photopeak-Effizienz genutzt werden:

$$\mathcal{E}_{\gamma,n} = \frac{P_{\gamma,n}}{P_{\gamma,ref}} \cdot \frac{\sigma_{\gamma,ref}^z}{\sigma_{\gamma,n}^z} \cdot \mathcal{E}_{\gamma,ref} \cdot \alpha_i \quad (8.5)$$

In Abbildung 47 ist die Photopeak-Effizienzkurve dargestellt. Die Daten wurden mit einer exponentiellen Polynomfunktion 4ter Ordnung gefittet [Kis1998]:

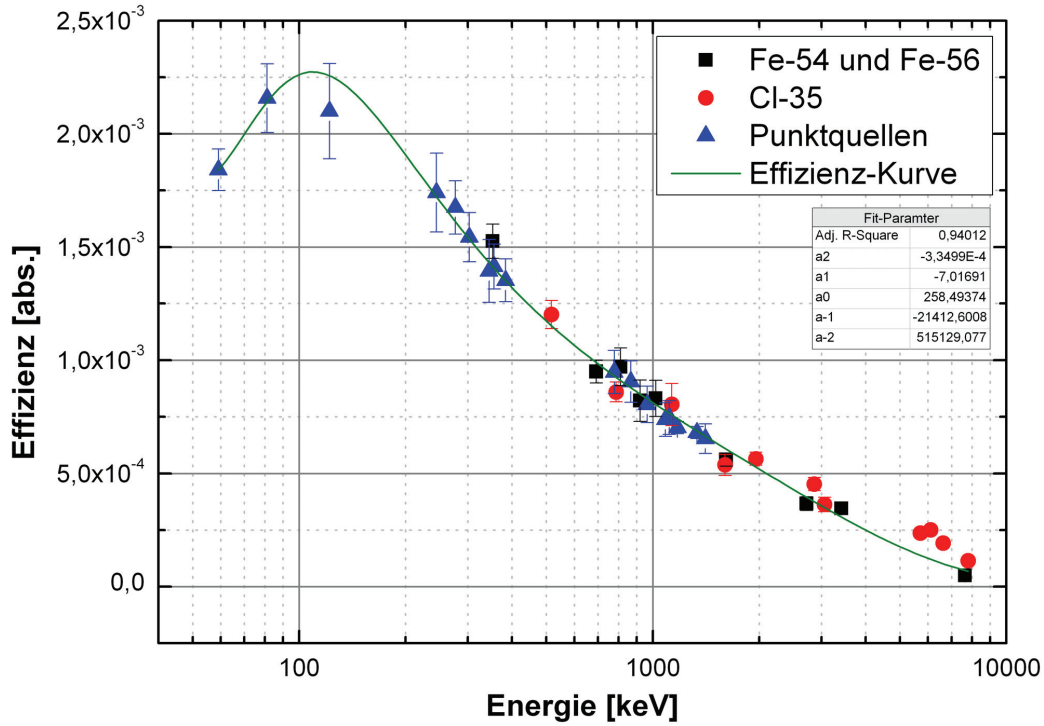
$$\varepsilon = \exp\left(\sum_{i=-2}^2 a_i \cdot E_{\gamma}^i\right) \quad (8.6)$$

Die Fitparameter sind in Abbildung 47 angegeben.

Die Kalibrierung des Spektrometers wurde im Rahmen einer Diplomarbeit zusätzlich mit einer Natriumchlorid-Probe durchgeführt und kam zu dem gleichen Ergebnis [Rose2009].

---

<sup>46</sup> In dem Geometriefaktor werden neben der Proben- und Messgeometrie auch die Absorptionseffekte berücksichtigt.



**Abbildung 47:** Photopeak-Effizienz für eine Punktquelle im Zentrum der Messkammer, 35 cm entfernt vom Detektor. Die Messungen mit der Chlor-Probe wurden im Rahmen einer Diplomarbeit durchgeführt [Rose2009].

#### 8.4. Die Photopeak-Effizienz für großvolumige homogene Proben

Mithilfe einer computergestützten Simulation kann von der ermittelten Photopeak-Effizienz für eine Punktquelle, auf die Photopeak-Effizienz einer großvolumigen Probe mit einer homogenen Matrixzusammensetzung geschlossen werden [Mauerhofer2009]. Dafür wird ein Vorwissen über die Geometrie, die Zusammensetzung und Dichte der Probe vorausgesetzt. Der Computeralgorithmus berechnet nach folgender Gleichung die Photopeak-Effizienz  $\varepsilon_{(E_\gamma)}$ :

$$\varepsilon_{(E_\gamma)} = \frac{1}{\sum_{i=1}^N \omega_i} \cdot \sum_{i=1}^N \left( \exp\left(-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_S \cdot \rho_S \cdot d_{S,i}\right) \cdot \exp\left(-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_M \cdot \rho_M \cdot d_{M,i}\right) \cdot \varepsilon_{0(E_\gamma)} \cdot \left(\frac{d_0}{d_i}\right)^2 \cdot \omega_i \right) \quad (8.7)$$

Bei den Größen  $d_{M,i}$  und  $d_{S,i}$  handelt es sich um die Wegstrecken in der Matrix bzw. die Wanddicke des Stahlfasses, die von den Photonen durchleuchtet werden. Die Eigenschaften der Probe gehen über die Massenschwächungskoeffizienten  $(\mu/\rho)_M$  der Matrix und  $(\mu/\rho)_S$  des Stahlfasses, sowie deren Dichten  $\rho_M$  und  $\rho_S$  in die Berechnung ein. Die Größe  $\varepsilon_{0(E_\gamma)}$  ist die Photopeak-Effizienz für eine Punktquelle im Zentrum der Messkammer, die sich im Abstand  $d_0$  zum Detektor-Kristall befindet. Der Abstand, der zu berechnenden Punkt-Aktivität, zum Detektor-Kristall wird durch  $d_i$  bestimmt. Die Größe  $\omega_i$  ist der Wichtungsfaktor für Aktivitätsverteilung. Ist der thermische Neutronenfluss in der Probe homogen, wird die Aktivität ebenfalls homogen sein. In diesem Fall ist der

Wichtungsfaktor  $\omega_i = 1$ . Für einen inhomogenen Neutronenfluss, wie es die MCNP-Simulationen für den schnellen Neutronenfluss (14 MeV) gezeigt haben, hängt der Wichtungsfaktor von dem makroskopischen Wirkungsquerschnitt und der Weglänge der Neutronen des durchstrahlten Materials ab:

$$\omega_i = \exp\left(-\Sigma_{S(14\text{MeV})} \cdot D_{S,i}\right) \cdot \exp\left(-\Sigma_{M(14\text{MeV})} \cdot D_{M,i}\right) \quad (8.8)$$

Hierbei sind  $\Sigma_{S(14\text{MeV})}$  und  $\Sigma_{M(14\text{MeV})}$  die makroskopischen Wirkungsquerschnitte für die Absorption von 14 MeV Neutronen im Stahlfass bzw. in der Matrix. Die Größen  $D_{S,i}$  und  $D_{M,i}$  sind die Wegstrecken für die 14-MeV-Neutronen bis zur i-ten Position, wo sie absorbiert werden.

Der mittlere thermische Neutronenfluss in einer Betonprobe hat die gleiche Größenordnung wie an der Oberfläche des Stahlfasses. Anhand der Aktivierung des Eisens im Stahlfass kann der thermische Neutronenfluss an der Probenoberfläche und damit auch in der Probe bestimmt werden. Es wurden mittels Gleichung 8.7, Simulationen für die Berechnung der Aktivierung des leeren Stahlfasses, sowohl mit thermischen Neutronen (homogene Aktivität), als auch mit schnellen Neutronen (heterogene Aktivität) durchgeführt. Für die Berechnungen wurden simulierte Punktquellen statistisch über die 2 mm Wanddicke des leeren 25-l-Stahlfasses verteilt. In Abbildung 48 ist die Energieabhängigkeit der Photopeak-Effizienz für die beiden Aktivierungsfälle dargestellt.

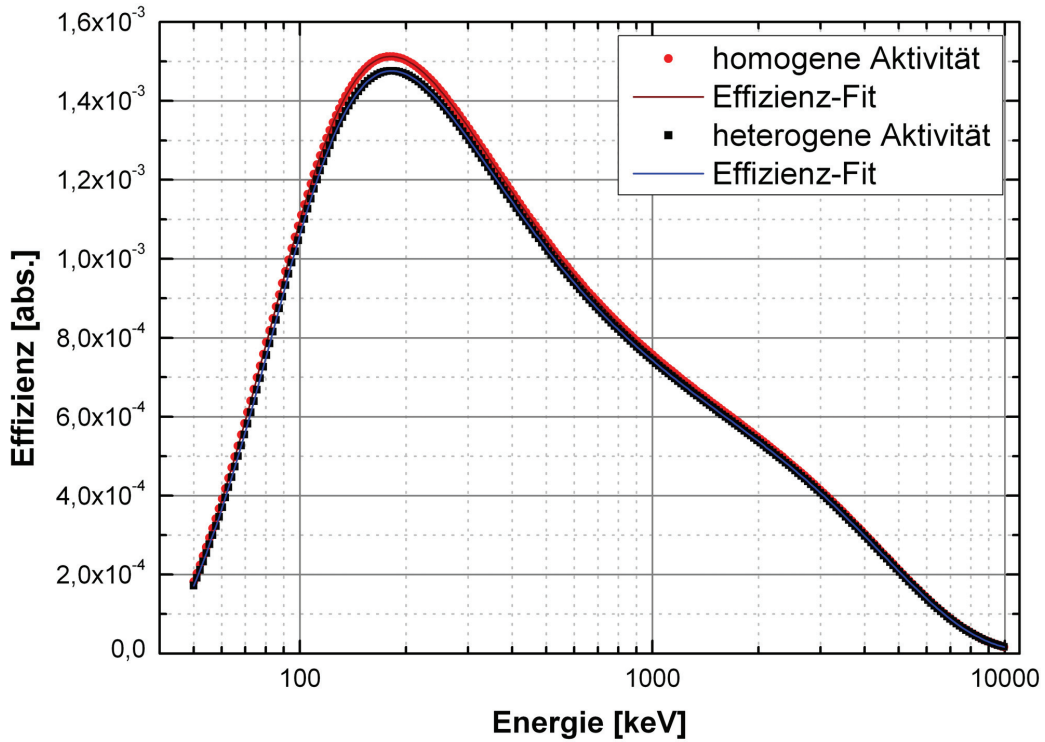
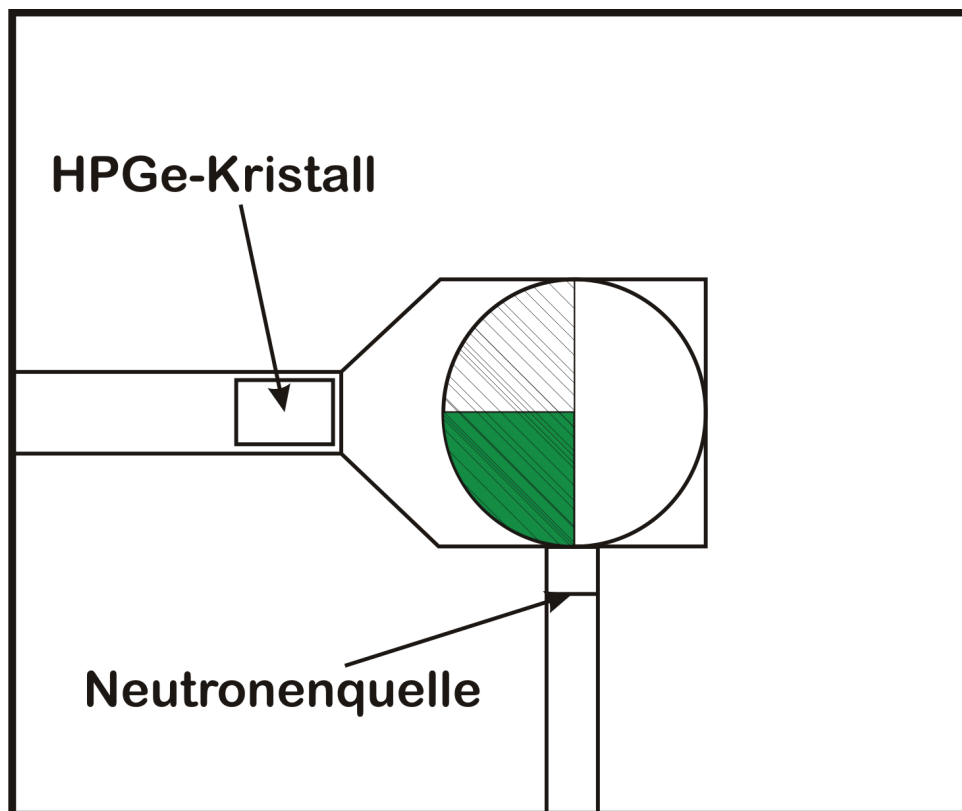


Abbildung 48: Photopeak-Effizienz für den Nachweis, der von einem 25-l-Fass (Mantelfläche, Boden und Deckel) emittierten Gamma-Strahlung.

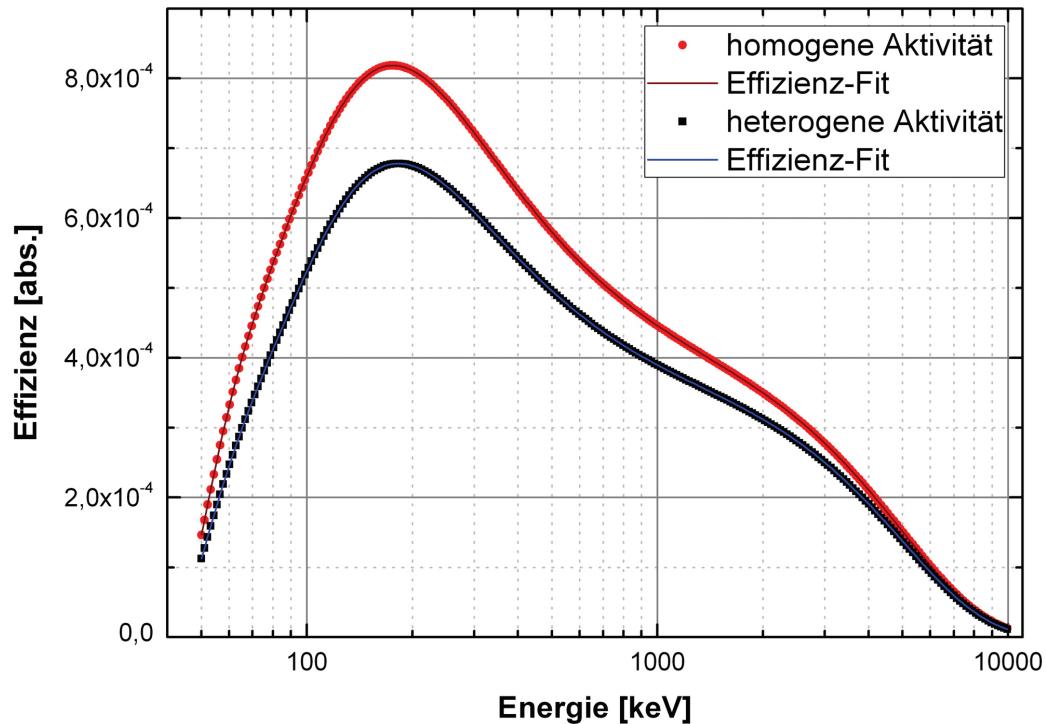
Die berechneten Photopeak-Effizienzen zeigen den typischen Verlauf einer Photopeak-Effizienz-Kurve. Unabhängig von der Art der Aktivierung, haben beide Photopeak-Effizienzkurven ihr Maximum bei 190 keV. Der Unterschied im niedrigen Energiebereich kann anhand von Abbildung 49 erklärt werden. Die Photopeak-Effizienz ist nicht für jeden Punkt in der Probe bzw. der Stahlfasswand gleich groß. Zum einen ist die Photopeak-Effizienz proportional zum Quadrat des Abstandes der Aktivität zum Kristall, zum anderen ist die Abschirmung für weiter entfernte Aktivitäten größer. Dieser Umstand ist unabhängig von der Art der Aktivierung. Bei der Aktivierung mit schnellen Neutronen hat allerdings der inhomogene Neutronenfluss noch einen Einfluss. Der Teil des Fasses bzw. Probenbereich, der näher an der Neutronenquelle ist, wird stärker aktiviert und führt dementsprechend zu einer höheren Photopeak-Effizienz. In Abbildung 49 ist der Probenbereich mit der größten Nachweisempfindlichkeit für die Aktivierung mit schnellen Neutronen grün und für die Aktivierung mit thermischen Neutronen schraffiert gekennzeichnet.



**Abbildung 49:** Der Bereich mit der größten Nachweiswahrscheinlichkeit für Gamma-Strahlung, die aus Reaktionen mit schnellen Neutronen erzeugt wird, befindet sich im grün gekennzeichneten Bereich. Für den schraffierten Bereich hat der Detektor die größte Effizienz für den Nachweis der Gamma-Strahlung, die durch die Aktivierung mit thermischen Neutronen erzeugt wird.

Da im Rahmen dieser Arbeit vor allem betonierte Probenfässer charakterisiert werden sollten, wurde die Photopeak-Effizienz für ein mit Beton ( $1,52 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) gefülltes Stahlfass berechnet. Es werden zwei Fälle unterschieden: Zum einen wurde die Photopeak-Effizienz für die Messung der Aktivität des Stahlfasses und zum anderen für die Messung der Probenaktivität berechnet. Die Photopeak-Effizienz

für das aktivierte Stahlfass wird für die Berechnung des thermischen und schnellen Neutronenflusses benötigt. Wie in Kapitel 11 beschrieben wird, dient das Stahlfass als Monitor für die Neutronenflussbestimmung. In diesem Zusammenhang ist es wichtig zu wissen, inwieweit die Gamma-Strahlung von dem Beton abgeschwächt wird. Die Berechnung der Photopeak-Effizienz wurde unter denselben Voraussetzungen wie oben, mit Gleichung 8.7, durchgeführt. In Abbildung 50 ist die Energieabhängigkeit der Photopeak-Effizienz für die Aktivierung mit thermischen und schnellen Neutronen des 25-l-Stahlfasses, unter Berücksichtigung der Betonprobe, dargestellt.

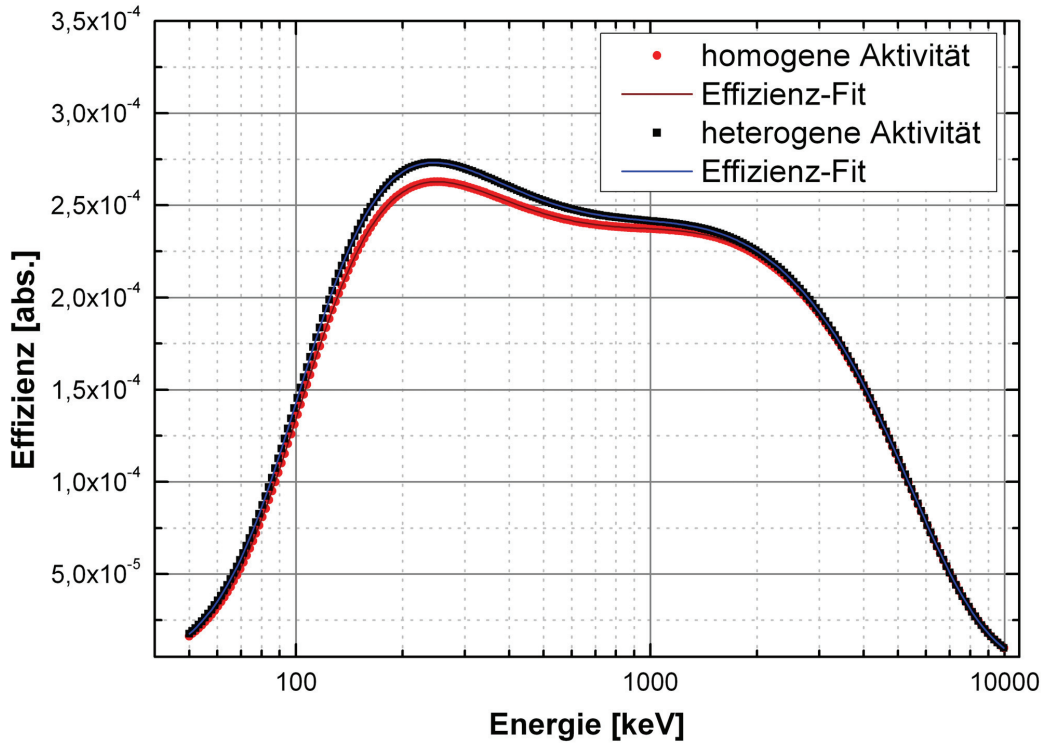


**Abbildung 50:** Photopeak-Effizienz für den Nachweis, der von einem mit Beton gefüllten 25-l-Fass (Mantelfläche, Boden und Deckel) emittierten Gamma-Strahlung.

Die Photopeak-Effizienz für das betonierte Stahlfass ist im Vergleich zum leeren Stahlfass deutlich geringer, da durch die Absorption der Gamma-Strahlung im Beton, wesentlich weniger Photonen im Detektor-Kristall ankommen. Zudem ist in Abbildung 50 deutlich zu erkennen, dass die Photopeak-Effizienz für die heterogene Aktivierung mit schnellen Neutronen deutlich kleiner ist, als bei der Aktivierung mit thermischen Neutronen. Der Grund hierfür ist in Abbildung 49 dargestellt, im Vergleich zur thermischen Aktivierung, trägt bei der heterogenen Aktivierung ein nur halb so großer Bereich zur Photopeak-Effizienz bei. Dadurch fällt die Absorption der Gamma-Strahlung im niederenergetischen Bereich stärker ins Gewicht.

Für die Berechnung der Nachweisgrenzen der Elemente in einer homogenen Betonmatrix ( $1,52 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ), wird die Photopeak-Effizienz für die Prompt-Gamma-Aktivität der Elemente benötigt. Die Simulationen wurden für die Berechnung der Photopeak-Effizienz anhand Gleichung 8.7 durchgeführt. Dabei wurden die Punktquellen statistisch über das komplette Volumen der

Betonprobe verteilt. In Abbildung 51 ist die Energieabhängigkeit der Photopeak-Effizienz für die Aktivierung mit thermischen und schnellen Neutronen dargestellt.



**Abbildung 51:** Photopeak-Effizienz für eine homogene 38 kg schwere Betonprobe in einem 25-l-Stahlfass.

Die berechneten Photopeak-Effizienzen in Abbildung 51 unterscheiden sich deutlich von dem typischen Verlauf einer Effizienz-Kurve. Im Vergleich zu Abbildung 50 ist die Photopeak-Effizienz besonders im Bereich bis 1 MeV deutlich geringer. Das Plateau zwischen 200 und 1100 keV entsteht dadurch, dass die niederenergetische Gamma-Strahlung stärker abgeschirmt wird, als die hochenergetische. Die starke Abschirmung ist auch ein Grund dafür, dass die Photopeak-Effizienz für die Aktivierung mit thermischen Neutronen etwas niedriger ist, als bei der Aktivierung mit schnellen Neutronen. Da sich die Photopeak-Effizienz auf das ganze Probenfass bezieht, fällt die Absorption der Gamma-Strahlung von weit entfernten Aktivitäten stärker ins Gewicht, zulasten der homogenen Aktivierung. Bei einer Energie von unter 200 keV sinkt die Photopeak-Effizienz so schnell ab, weil ein Großteil der Gamma-Strahlung von der Probe selbst absorbiert wird. Im Gegensatz dazu wird die hochenergetische Gamma-Strahlung von über 1,2 MeV in dem Detektor-Kristall kaum absorbiert und dadurch auch nicht registriert.

Die Photopeak-Effizienzen in den Abbildungen 48 bis 51 wurden mit einer exponentiellen Polynomfunktion 8ten Grades gefittet [Kis1998]:

$$\varepsilon = \exp\left(\sum_{i=-4}^8 a_i \cdot E_{\gamma}^i\right) \quad (8.9)$$

Die Fit-Parameter sind in Tabelle 18 aufgelistet.

**Tabelle 18:** Fit-Parameter für die Effizienzkurven in den Abbildungen 48, 50 und 51.

Fit- Para- meter	Photopeak-Effizienz – Fasswand – leeres Stahlfass		Photopeak-Effizienz – Fasswand – mit Beton gefülltes Stahlfass		Photopeak-Effizienz – Volumen – mit Beton gefülltes Stahlfass	
	Homogene Aktivierung	Heterogene Aktivierung	Homogene Aktivierung	Heterogene Aktivierung	Homogene Aktivierung	Heterogene Aktivierung
$a_4$	$-4,81 \cdot 10^7$	$-4,64 \cdot 10^7$	$-8,77 \cdot 10^7$	$-8,12 \cdot 10^7$	$-2,91 \cdot 10^7$	$-3,31 \cdot 10^7$
$a_3$	$2,54 \cdot 10^6$	$2,48 \cdot 10^6$	$3,97 \cdot 10^6$	$3,78 \cdot 10^6$	$2,13 \cdot 10^6$	$2,26 \cdot 10^6$
$a_2$	$-5,34 \cdot 10^4$	$-5,38 \cdot 10^4$	$-6,98 \cdot 10^4$	$-6,83 \cdot 10^4$	$-5,55 \cdot 10^4$	$-5,66 \cdot 10^4$
$a_1$	394,13	390,96	479,36	470,20	403,47	409,86
$a_0$	-7,36	-7,37	-8,26	-8,42	-9,36	-9,33
$a_1$	$-2,16 \cdot 10^{-4}$	$-2,20 \cdot 10^{-4}$	$2,61 \cdot 10^{-3}$	$3,21 \cdot 10^{-4}$	$1,21 \cdot 10^{-3}$	$1,17 \cdot 10^{-3}$
$a_2$	$8,68 \cdot 10^{-8}$	$8,99 \cdot 10^{-8}$	$-1,65 \cdot 10^{-7}$	$-1,92 \cdot 10^{-7}$	$-7,59 \cdot 10^{-7}$	$-7,36 \cdot 10^{-7}$
$a_3$	$-4,99 \cdot 10^{-11}$	$-5,12 \cdot 10^{-11}$	$3,74 \cdot 10^{-11}$	$4,55 \cdot 10^{-11}$	$2,62 \cdot 10^{-10}$	$2,53 \cdot 10^{-10}$
$a_4$	$1,25 \cdot 10^{-14}$	$1,28 \cdot 10^{-14}$	$-6,72 \cdot 10^{-15}$	$-8,34 \cdot 10^{-15}$	$-5,92 \cdot 10^{-14}$	$-5,72 \cdot 10^{-14}$
$a_5$	$-1,89 \cdot 10^{-18}$	$-1,94 \cdot 10^{-18}$	$7,77 \cdot 10^{-19}$	$9,85 \cdot 10^{-19}$	$8,41 \cdot 10^{-18}$	$8,11 \cdot 10^{-18}$
$a_6$	$1,71 \cdot 10^{-22}$	$1,76 \cdot 10^{-22}$	$-5,53 \cdot 10^{-23}$	$-7,19 \cdot 10^{-23}$	$-7,28 \cdot 10^{-22}$	$-7,01 \cdot 10^{-22}$
$a_7$	$-8,51 \cdot 10^{-27}$	$-8,74 \cdot 10^{-27}$	$2,20 \cdot 10^{-27}$	$2,95 \cdot 10^{-27}$	$3,50 \cdot 10^{-26}$	$3,37 \cdot 10^{-26}$
$a_8$	$1,80 \cdot 10^{-31}$	$1,84 \cdot 10^{-31}$	$-3,75 \cdot 10^{-32}$	$-5,21 \cdot 10^{-32}$	$-7,20 \cdot 10^{-31}$	$-6,93 \cdot 10^{-31}$

Die Ergebnisse legen nahe, dass für eine optimale Charakterisierung inhomogener Probenzusammensetzungen, eine Rotation des Stahlfasses notwendig ist. Nur so kann erreicht werden, dass die nachteiligen Einflüsse der Selbstabsorption der Neutronen und Photonen in der Probe minimiert werden. Im Rahmen dieser Arbeit war eine ferngesteuerte und automatisierte Rotation der Proben nicht vorgesehen. Für die weitere Entwicklung des PGNA-Systems sollte diese Option berücksichtigt werden.

## 8.5. MCNP-Studie zur Berechnung der Photopeak-Effizienz für ein 50-l-Volumen

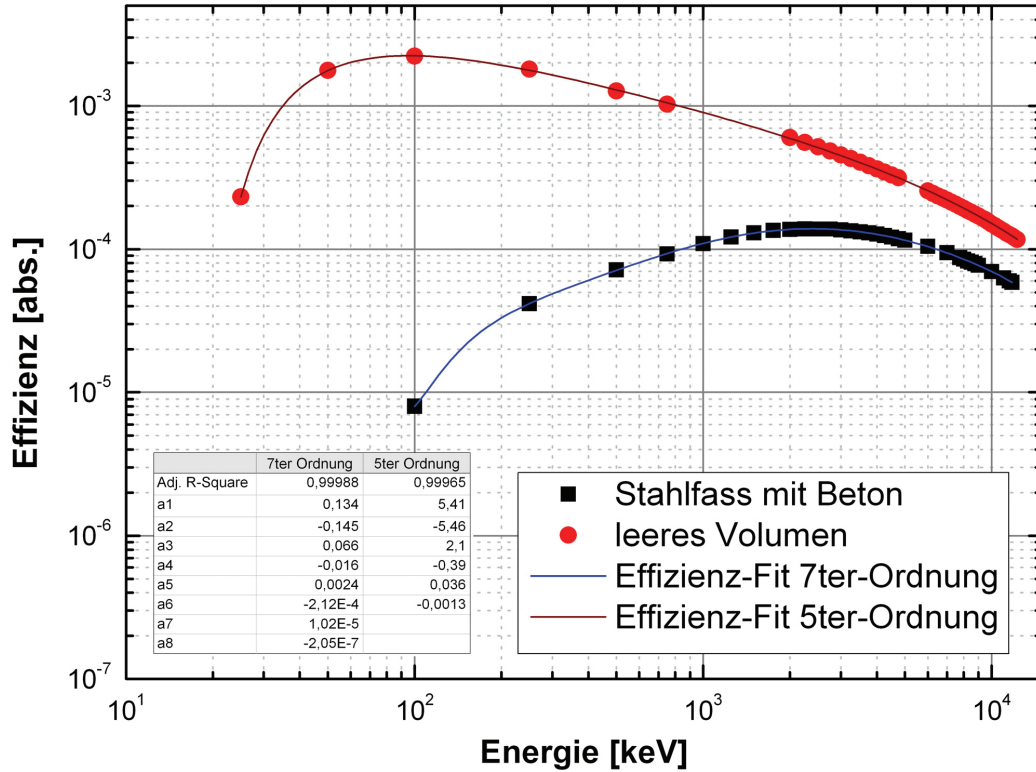
Für die Berechnung der Photopeak-Effizienz für ein 50-l-Volumen wurde das MCNP-Modell aus Kapitel 6 zugrundegelegt. Es wurde sowohl die Volumen-Photopeak-Effizienz für ein mit Beton ( $1,6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) gefülltes Stahlfass, als auch für das äquivalente leere Volumen (Luft) berechnet. In Anlehnung an eine homogene Aktivierung mit thermischen Neutronen wurden die monoenergetischen Punktquellen statistisch in dem Volumen (50 l) verteilt. In 33 (leeres Volumen) bzw. 44 (mit Stahlfass) unabhängigen Simulationen wurde die Energie der Punktquellen bis auf 12 MeV erhöht. Da MCNP die Ergebnisse der berechneten Photonendeposition auf ein Quellteilchen normiert, entsprechen diese direkt der absoluten Photopeak-Effizienz für das 50-l-Volumen. In Abbildung 52 sind die Photopeak-Effizienzkurven der beiden Fälle einander gegenübergestellt. Die berechneten Ergebnisse wurden mit zwei unterschiedlichen Effizienzfunktionen gefittet [Kis1998]. Die Daten für das leere Volumen wurde mit einer Funktion 5ter Ordnung gefittet:

$$\varepsilon = \frac{1}{E_r} \cdot \sum_{i=1}^6 a_i \cdot (\ln E_r)^{i-1} \quad (8.10)$$

Für den Fit der Photopeak-Effizienz des Stahlfassess mit Beton wurde eine logarithmische Funktion 7ter Ordnung benutzt:

$$\ln \varepsilon = \sum_{i=1}^8 a_i \cdot (\ln E_\gamma)^{i-1} \quad (8.11)$$

Die Fit-Parameter sind in der Abbildung 52 angegeben.



**Abbildung 52:** Photopeak-Effizienz für ein leeres 50-l-Volumen (Luft) und für ein mit Beton gefülltes 50-l-Stahlfass. Die Ergebnisse entsprechen einer homogenen Aktivierung mit thermischen Neutronen.

Die Photopeak-Effizienz für das 50-l-Stahlfass mit dem Beton ist im niederenergetischen Bereich unter 1 MeV signifikant geringer als für das leere Volumen. Der Schwächungskoeffizient für Beton mit einer Dichte von  $1,6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  steigt für Gammas bei 100 keV bis auf einen Wert von  $0,278 \text{ cm}^{-1}$  an [Krieger2007, S. 609]. Unterhalb dieser Energie erreichen aufgrund der Selbstabsorption der Gamma-Strahlung in der Probe nur noch sehr wenige Photonen den Detektor-Kristall.





# Kapitel 9

## Probenherstellung

### **Zusammenfassung**

Bei der Herstellung der einzelnen Proben muss die zu erwartende Nachweisempfindlichkeit des PGNA-Prototypsystems berücksichtigt werden. Die Konzentrationen der chemotoxischen Stoffe in den betonierten Probenfässern müssen sowohl den zu erwartenden Nachweisgrenzen entsprechen, als auch die Anforderungsbedingungen des Endlagers erfüllen. Es wurden homogene und inhomogene Probenfässer, mit verschiedenen Zusammensetzungen, hergestellt. In diesem Kapitel werden die Herstellungsprozeduren der jeweiligen Proben dargestellt.

### 9.1. Homogene Betonprobe mit definierter Schwermetallkonzentration

Bei der Herstellung der homogenen Probenfässer wurde darauf geachtet, dass die Prozedur zur Anfertigung des Betons nach dem gleichen Muster wie bei den radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung geschieht. Das Verfahren für das Zusammenmischen des Zements, der Zuschüsse und des Zugabewassers orientierte sich an den Herstellungsvorschriften der Betriebsdirektion „Nuklear Service/ Dekontamination“ (B-ND) im Forschungszentrum Jülich. Die Stahlfässer, in denen die Zementmatrix angerührt wurde, sind von der Firma MASCHINEN-MEYER (Sulingen) speziell für das PGNA-Prototyp-System angefertigt worden. Es wurden 25 und 50 l Fässer mit einem Durchmesser von 37,5 cm und einer Höhe von 23 cm bzw. 41 cm hergestellt. Die Wandstärke der Fässer entspricht mit 1,5 mm denen der 200 l RRW-Fässer für die radioaktiven Abfälle. Das Gewicht eines 25-l-Fasses beträgt 7820 g und das eines 50-l-Fasses 11200 g. Der Deckel hat ein Gewicht von 1790 g. Für die Betonherstellung wurden Portlandhüttenzement (CEM II/B-S 32,5 R), Quarzsand und Zugabewasser (normales Leitungswasser) verwendet. Der Zement wurde mit dem Quarzsand im Verhältnis 1:3 (Volumenverhältnis) gemischt. Das Zugabewasser wurde entsprechend einem Wasserzementwert (w/z) von 0,4 zugegeben, bei diesem Wert entspricht der Beton der Festigkeitsklasse C50/60 nach DIN EN206 und hat nach 28 Tagen Trocknung eine Druckfestigkeit von 50 N·mm<sup>-2</sup>. Der Wasserzementwert berechnet sich aus dem Massenverhältnis vom Wasser zum Zement [VDZ2007, S. 125]. Für die Herstellung eines 25-l-Probenfasses wurden 8,1 kg Zement, 26,9 kg Quarzsand und 3,3 l Wasser zusammengemischt.

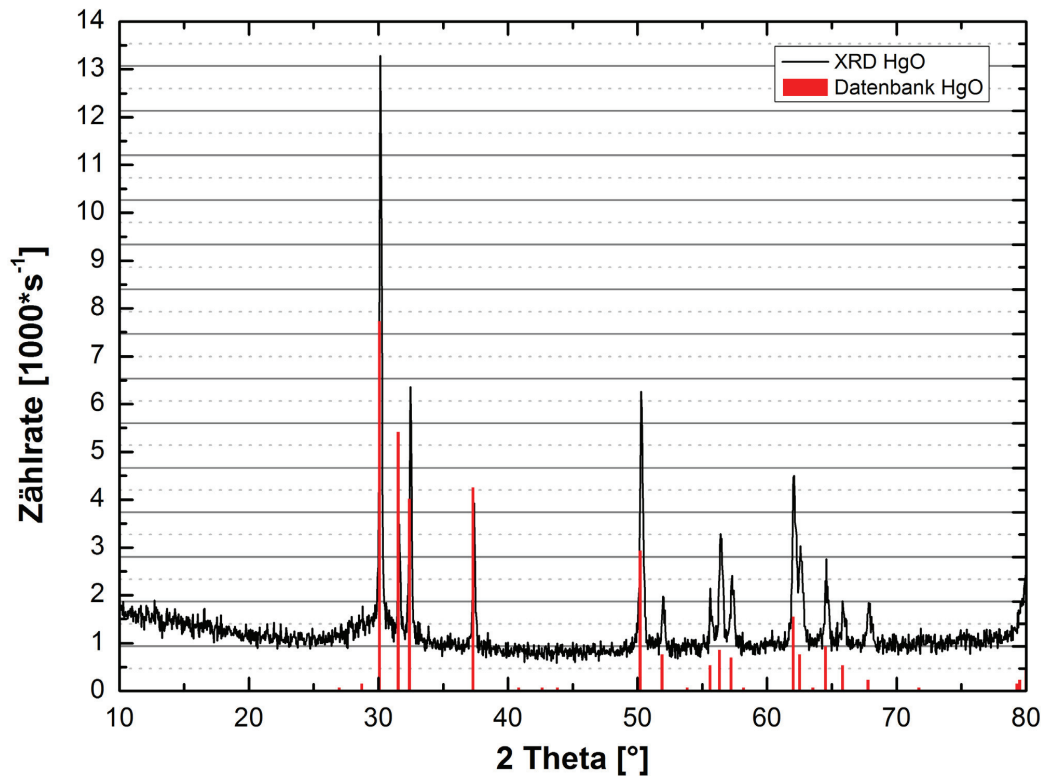
Cadmium, Blei und Quecksilber wurden als die ersten Kandidaten für die PGNA ausgewählt. Die Elemente sollten homogen in der Zement-Matrix verteilt werden. Deshalb wurden die Schwermetalle als Nitrat- bzw. Acetat-Verbindungen über das Zugabewasser dem Zement beigemischt. Dies sollte zu einer möglichst homogenen Verteilung der Schwermetalle in den Betonproben führen, da sich Nitrate und Acetate allgemein sehr gut in Wasser lösen lassen. Es wurden Chemikalien mit einer Reinheit von jeweils über 99 % benutzt:

- Quecksilber(II)nitrat Monohydrat:  $\text{Hg}(\text{NO}_3)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ;  $M_{\text{Hg}(\text{NO}_3)_2} = 324,6 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$   
 $\text{Hg} = 200,6 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$  (58,5 % Molmassen-Anteil)
- Cadmiumnitrat Tetrahydrat:  $\text{Cd}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ;  $M_{\text{Cd}(\text{NO}_3)_2} = 308,47 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$   
 $\text{Cd} = 112,4 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$  (36,4 % Molmassen-Anteil)
- Blei(II)acetat Trihydrat:  $(\text{CH}_3\text{COO})_2\text{Pb} \cdot 3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ;  $M_{(\text{CH}_3\text{COO})_2\text{Pb}} = 379,34 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$   
 $\text{Pb} = 207,2 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$  (54,6 % Molmassen-Anteil)

Die Löslichkeit der Nitrate und des Acetats im Wasser wurde im Vorfeld untersucht. Im Falle von Quecksilbernitrat hat sich gezeigt, dass nach kurzer Zeit ein rötlichbrauner Stoff ausfällt. Nach einem Tag hatten sich am Boden des Reagenzglases größere Mengen des unbekannten Stoffes niedergeschlagen. Das getrocknete Pulver wurde mittels Röntgenbeugung (XRD<sup>47</sup>) untersucht und mit Spektren aus der Datenbank ICDD verglichen. In Abbildung 53 ist das Röntgenspektrum der

<sup>47</sup> XRD steht für „*X-Ray Diffraction*“ und ist die Beugung von Röntgenstrahlung an geordneten Strukturen wie Kristallen bzw. Quasikristallen. Bei der Röntgenbeugung handelt es sich um eine Standardmethode zur Strukturaufklärung kondensierter Materie.

Probe dargestellt. Es hat sich herausgestellt, dass es sich bei dem Pulver um Quecksilberoxid ( $\text{HgO}$ ) handelt. Die Ergebnisse stimmen laut Datenbank zu 70 % mit einem  $\text{HgO}$ -Monohydrid überein.

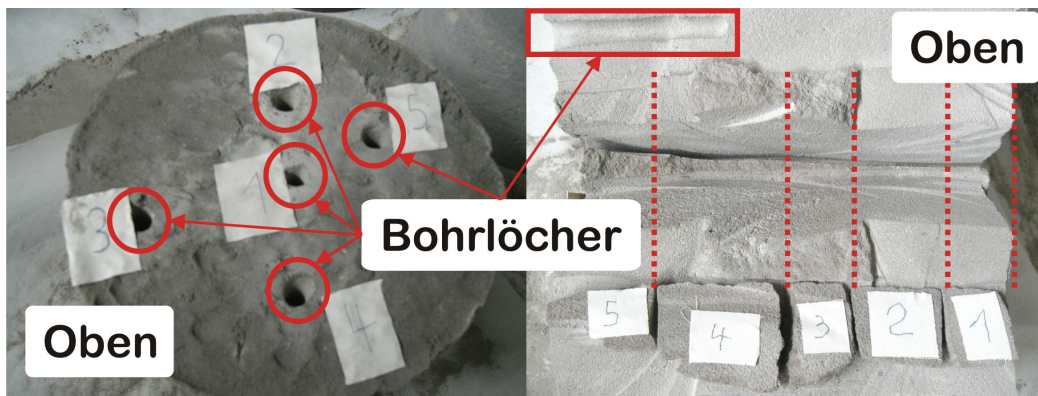


**Abbildung 53:** XRD-Spektrum der  $\text{HgO}$ -Pulverprobe im Vergleich zum Datenbankeintrag eines  $\text{HgO}$ -Monohydrid.

Um das Ausfällen des Quecksilbers zu verhindern bzw. zu mindern, wurde das Wasser mit einer geringen Menge an Salpetersäure ( $\text{HNO}_3$ ) angesäuert. Es konnte dadurch auch nach 2 Tagen keine Ausfällung von  $\text{HgO}$  im Wasser beobachtet werden. Für das Anmischen des Betons wurde diese Prozedur übernommen. Zwar ist Säure ein Zementgift und beeinträchtigt die basische Reaktion beim Herstellungsprozess des Betons, aber in diesem Fall stand die homogene Verteilung der Schwermetalle im Vordergrund. Desweiteren ist die Säuremenge so gering, dass keine unzumutbare Instabilität des Betons zu erwarten wäre. Eine genaue Untersuchung der Stabilität des Betons wurde aus diesen Gründen nicht durchgeführt.

Es wurde eine 12-l-Probemischung hergestellt, um die homogene Verteilung der Schwermetalle im Beton anhand einer kleinen Probe zu überprüfen. Dazu wurden 3 l Portlandhüttenzement, 9 l Quarzsand und 1,7 l Wasser zusammengemischt. Dem Zugabewasser wurden 60 g Cadmiumnitrat (21,9 g Cd), 40 g Quecksilbernitrat (23,4 g Hg) und 190 g Bleiacetat (103,7 g Pb) beigemischt. Der Beton wurde in einem Plastikeimer mit 26 cm Durchmesser und 23 cm Höhe angemischt. Die Menge der beiden Nitrats und des Acetats entsprach einer Konzentration von 1 g Cadmium, 1 g Quecksilber und 5 g Blei pro Kilogramm Beton. Nach drei Wochen Trocknung wog der Beton ohne Behälter 20408 g. Es wurden fünf Bohrlöcher in den Beton gesetzt und in Tiefen von 3, 7, 13 und 20 cm

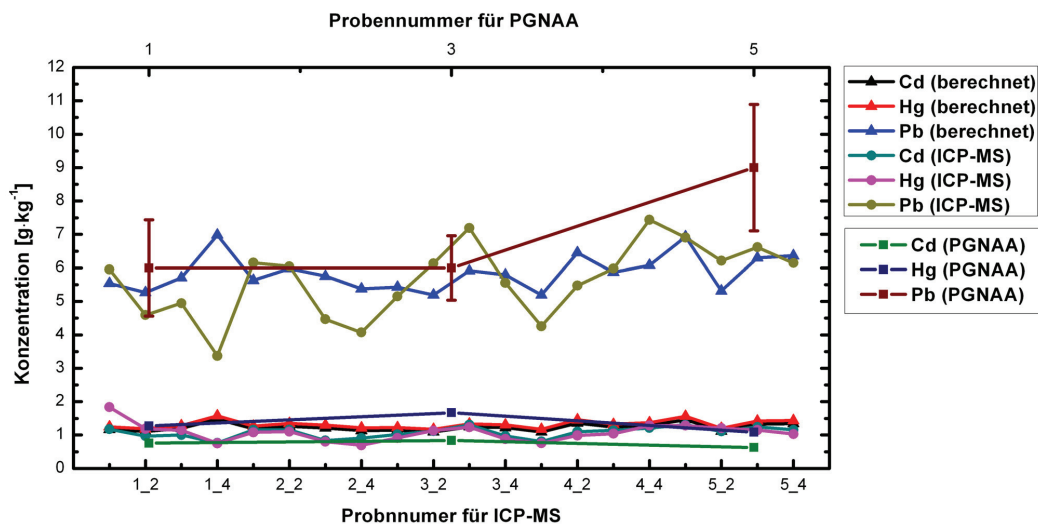
Pulverproben entnommen (siehe Abbildung 54). Die 20 Proben sollten mit dem institutseigenen Massenspektrometer (ICP-MS) charakterisiert werden. Hierfür mussten die Proben, die ein Gewicht zwischen 0,0511 und 0,0687 g hatten, aufgeschlossen werden. Der Aufschluss der Betonprobe wurde durch ein im Institut entwickeltes Verfahren durchgeführt [Produzhina2005]. Es konnte damit eine 100-prozentige Lösung des Betons erreicht werden. Jede Probe wurde mit 10 ml  $\text{HNO}_3$ , 2 ml Flusssäure (48 %  $\text{HF}$ ) und 1 ml Wasserstoffperoxid (35 %  $\text{H}_2\text{O}_2$ ) vermengt und in einem Mikrowellenherd aufgeschlossen. Die Lösungen wurden anschließend noch einmal verdünnt, um das ICP-MS Gerät nicht durch die relativ hohe Konzentration an Flusssäure zu beschädigen.



**Abbildung 54:** Das linke Foto zeigt die Betonprobe von oben. Die Positionen der Bohrlöcher wurden willkürlich gewählt. Auf dem rechten Foto wurde der Beton aufgesägt und die Proben 1 - 5 für die PGNAA-Charakterisierung im Institut für Isotopenforschung (Budapest) entnommen.

Parallel zu der Messung mit dem Massenspektrometer wurden drei feste Proben (Nr. 1, Nr. 3 und Nr. 5) nach Budapest zu dem Institut für Isotopenforschung geschickt. Die Kollegen betreiben dort, wie in Kapitel 2 beschrieben, ein zertifiziertes PGNAA-System für die Charakterisierung kleiner Proben. Die Ergebnisse ihrer Analysen sind zum Vergleich mit der ICP-MS Analyse in Abbildung 55 dargestellt. Im Anhang A7 sind die Einzelergebnisse tabellarisch aufgelistet. Für die Hauptelemente im Beton wurden folgende Konzentrationen bestimmt:  $\text{H} = 0,41 \pm 0,01 \%$ ,  $\text{Si} = 37 \pm 0,5 \%$ ,  $\text{Ca} = 8,9 \pm 0,9 \%$ ,  $\text{Al} = 0,85 \pm 0,16 \%$ ,  $\text{Mg} = 0,57 \pm 0,04 \%$ ,  $\text{Fe} = 0,45 \pm 0,04 \%$ ,  $\text{K} = 0,07 \pm 0,01 \%$ ,  $\text{Ti} = 0,075 \pm 0,004 \%$  und  $\text{Mn} = 294 \pm 43 \text{ ppm}$ .

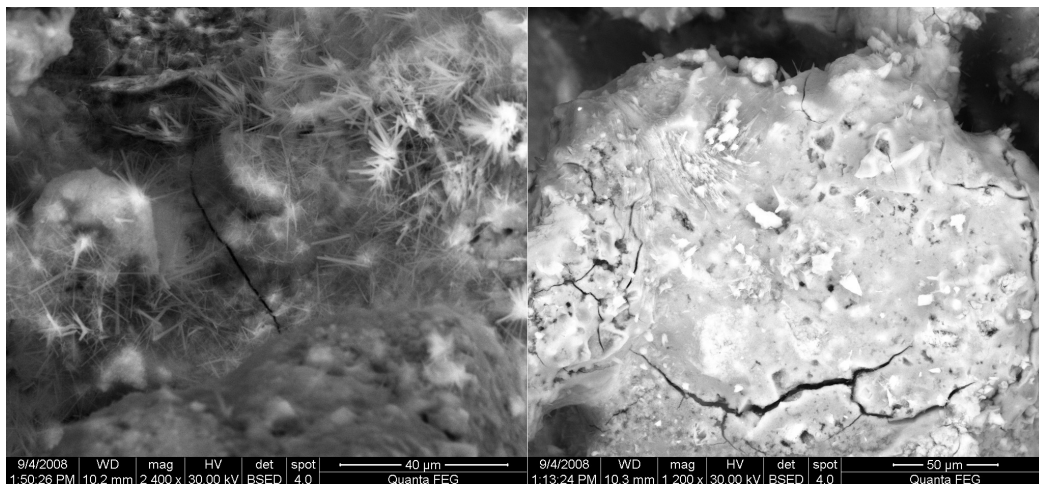
Sowohl die Ergebnisse der ICP-MS Analyse, als auch der PGNAA-Charakterisierung stimmen mit den berechneten Konzentrationswerten überein. Die Herstellung einer Betonprobe mit homogener Schwermetallverteilung war erfolgreich.



**Abbildung 55:** Die berechneten Werte wurden aus den bekannten Größen der Probenherstellung bestimmt. Die Fehlerwerte der ICP-MS und der PGNAA sind zu klein, als dass sie im Diagramm dargestellt werden können. Blei lässt sich mit thermischen Neutronen sehr schwer aktivieren, dementsprechend ist der Fehler der gemessenen Konzentration sehr groß.

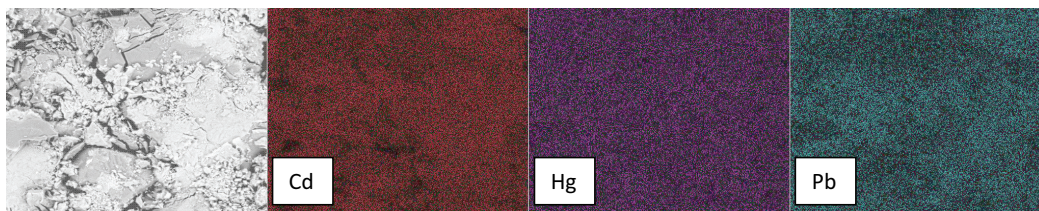
## 9.2. Herstellung der verschiedenen Probenfässer

Nach der im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Methode wurde ein 25-l-Probenfass (Nr. 1) ohne Schwermetalle und ein 25-l-Probenfass (Nr. 2) mit Schwermetallen hergestellt. Das Probenfass Nr. 1 wog nach der Herstellung inklusive Trocknung 47,1 kg. Davon entfielen 9,6 kg auf das Stahlfass und 37,5 kg auf den Beton. Im Fall des Probenfasses Nr. 2 wurden 8,23 g Cadmiumnitrat (3 g Cd), 6,84 g Quecksilbernitrat (4 g Hg) und 476,19 g Bleiacetat (260 g Pb) über das Zugabewasser dem Beton beigemischt. Diese Mengen entsprachen einer Konzentration von 79 ppm für Cadmium, 105 ppm für Quecksilber und 0,68 % für Blei in der 38-kg-Betonprobe. In Abbildung 56 sind zwei Aufnahmen des Betons in den Probenfässern Nr. 1 und 2 gezeigt, die mit dem Rasterelektronenmikroskop (REM) des IEF-6 aufgenommen wurden.



**Abbildung 56:** Das Bild auf der linken Seite zeigt die Oberfläche des Betons von Probenfass Nr. 1. Es sind kristalline bzw. geordnete Strukturen zu erkennen, die sich über einen Großteil der Oberfläche verteilen. Auf dem rechten Bild ist die Oberfläche von Probenfass Nr. 2 zu sehen. Die Struktur ist sehr viel glatter als in dem Fall ohne Schwermetalle. Die Proben wurden an unterschiedlichen Positionen untersucht, immer mit dem gleichen Ergebnis.

Bei der Herstellung von Probenfass Nr. 2 wurden Stichproben zur Analyse entnommen. Obwohl das Verfahren zur Herstellung von homogenen Proben mit Schwermetallen mittels ICP-MS und PGNAA-Budapest verifiziert werden konnte, wurde eine Überprüfung der Homogenität mit dem Rasterelektronenmikroskop durchgeführt. Das Elektronenmikroskop ist in der Lage ein sogenanntes EDX-Mapping der Proben zu erstellen. Dabei fährt der Elektronenstrahl in einem definierten Bereich über die Probe, wobei mit einem Si(Li)-Detektor gleichzeitig das dabei entstehende Röntgenspektrum gemessen wird. Die Untersuchung wurde mit verschiedenen Proben an unterschiedlichen Positionen durchgeführt. In Abbildung 57 ist das Ergebnis eines EDX-Mappings dargestellt.



**Abbildung 57:** Das Bild ganz links zeigt den Ausschnitt der Probenoberfläche, der durch das EDX-Mapping untersucht wurde. Die anderen Bilder zeigen die Ergebnisse aus dem Röntgenspektrum. Jeder Punkt symbolisiert die Röntgenpulse des jeweiligen Elementes (L-Kante). Die Helligkeit der Punkte gibt die Konzentration der Elemente wieder.

Die Ergebnisse des EDX-Mappings bestätigen eine homogene Verteilung der Schwermetalle im Probenfass Nr. 2.

Probenfass Nr. 3 hatte eine inhomogene Matrixzusammensetzung. Es wurde eine geringere Menge Beton von 20,5 kg bewusst angemischt. Dem Zugabewasser wurden 348,5 g Quecksilberniträt, 323,8 g Bleiacetat und 117,1 g Borsäure ( $\text{H}_3\text{BO}_3$ , mit 17,48 % Bor-Molarmassenanteil) beigemischt. Diese

Mengen entsprachen einer Konzentration von 1 % Quecksilber, 0,86 % Blei und 0,1 % Bor in der Betonprobe. Zusätzlich wurde noch ein 2550 g schwerer Blei-Stein in dem Beton einzementiert. Dieser Block sollte eine Inhomogenität in der Betonmatrix simulieren. Es wurde Blei ausgewählt, weil seine Aktivierung vorwiegend mit schnellen Neutronen erreicht werden kann. Der Block befand sich in der Mitte der Betonmatrix. Es sollte überprüft werden, ob das Blei insoweit aktiviert werden kann, dass seine Prompt-Gamma-Linien hinter der Betonabschirmung gemessen werden können.

Um den Einfluss einer Probe ohne Moderationseigenschaften zu überprüfen, wurde Probenfass Nr. 4 nur mit Metallspänen von der Drehmaschine in der mechanischen Werkstatt gefüllt. Das Stahlfass wog zusammen mit den Spänen 21,6 kg. Da das Fass keinerlei Beton enthielt, war somit auch „kein“ Wasserstoff in der Probe vorhanden. Dadurch besaß die Probe keine signifikanten Moderationseigenschaften.

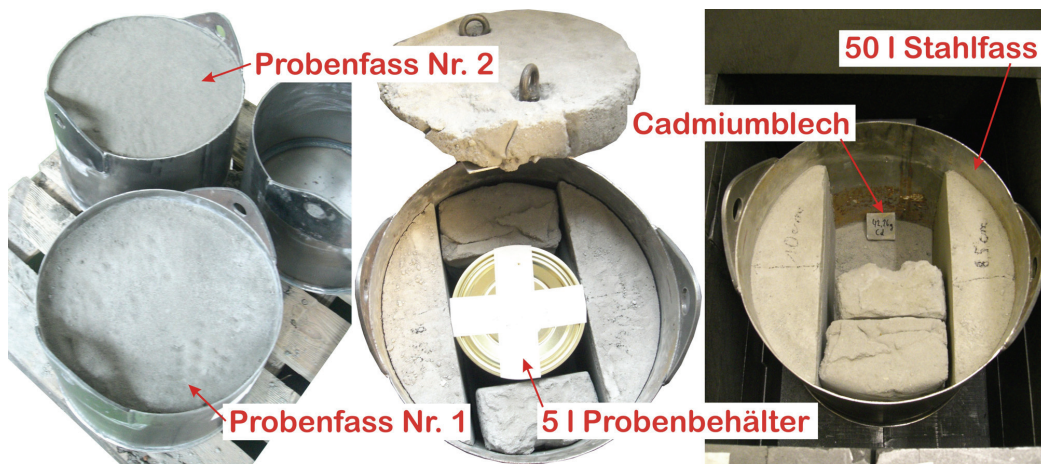
Tabelle 19 fasst die Charakteristiken der hergestellten Proben zusammen.

**Tabelle 19:** Charakteristika der verschiedenen Probenfässer.

Probenfass		Nr. 1	Nr. 2	Nr. 3	Nr. 4
Gewicht	[kg]	47,1	47,6	33,7	21,6
Cadmium-Anteil	[g]	-	3	-	-
Quecksilber-Anteil	[g]	-	4	204	-
Blei-Anteil	[g]	-	260	2727	-
Bor-Anteil	[g]	-	-	20,5	-
Metallspäne	[kg]	-	-	-	12
Beton-Gewicht	[kg]	37,5	37,5	20,5	-
Zusammensetzung		homogen	homogen	inhomogen	homogen

Die Charakterisierung inhomogener Proben ist sehr viel schwieriger als die homogener Proben. Der Neutronen- und Photonenfluss in der Probe hängt stark von ihrer Zusammensetzung ab. Je nachdem, ob die Inhomogenität ein eher moderierender oder absorbierender Stoff ist, kann der Neutronen- oder Photonenfluss stärker geschwächt werden. Ist die Inhomogenität z. B. ein starker Neutronenabsorber wie ein Cadmiumblech, wird der thermische Neutronenfluss lokal (!) im Bereich des Absorbers abgeschwächt. Durch die Moderation der schnellen Neutronen, vor allem im Graphit, wird der komplette thermische Neutronenfluss hingegen kaum geschwächt. Problematischer sind Materialien mit einer hohen Dichte, wie z. B. Blei, weil sie die Gamma-Strahlung in Richtung Detektor abschirmen. Um diese Einflüsse bei der PGNAA inhomogener Proben zu untersuchen, wurde ein 50-l-Stahlfass speziell präpariert. Das Fass wurde nicht komplett mit Beton verfüllt, sondern es wurde ein Spalt in der Mitte gelassen. Dieser Spalt hatte einen Durchmesser von 19 cm und reicht quer durch das Fass (siehe Abbildung 58). Der Boden des Stahlfasses war bis zu einer Höhe von 10 cm mit Beton (18,8 kg) verfüllt. Es wurden Betonklötze angefertigt, die dazu genutzt werden konnten, den Spalt beliebig zu verkleinern. Der Fassdeckel wurde aus 11,1 kg Beton hergestellt und hatte eine Dicke von 7,5 cm. Insgesamt wog das Probenfass 49,4 kg. In mehreren Experimenten wurde dieses 50-l-Fass bestrahlt. Ein Cadmiumblech wurde in verschiedenen Positionen eingebracht.





**Abbildung 58:** Auf dem linken Foto sind die 25-l-Probenfässer nach der Trocknung dargestellt. In der Mitte ist das 50-l-Probenfass mit einer 5-l-Dose abgebildet. Dieser Behälter wurde genutzt, um darin verschiedene Proben zu platzieren. Das rechte Foto zeigt das 50-l-Fass in der Graphitkammer.

# Kapitel 10

## Charakterisierung verschiedener Proben

### Zusammenfassung

Es wurden sowohl Einzelproben, als auch Probenfässer charakterisiert. Die Bestrahlung der Einzelproben wurde durchgeführt, um die Nachweisgrenzen (NWG) einzelner Elemente mit unterschiedlichen Wirkungsquerschnitten zu ermitteln und um für die Energie- bzw. Effizienzkalibrierung des Systems experimentelle Daten zu erhalten. Die Prompt-Gamma-Spektren der verschiedenen Probenfässer wurden mit dem Ziel analysiert, sowohl die Nachweisgrenzen der Schwermetalle Cd, Hg und Pb zu bestimmen, als auch den Einfluss der unterschiedlichen Probenzusammensetzung auf den Neutronenfluss zu überprüfen. Es wurde auch eine Erdreichprobe von einem ehemaligen Zechengelände analysiert, mit dem Ergebnis, dass Spuren von Samarium in der Probe nachgewiesen werden konnten. Desweiteren werden die Ergebnisse einer Messkampagne zur Charakterisierung inhomogener Proben präsentiert.

### 10.1. Hintergrundspektrum der Graphitkammer – Nullprobenmessung

Für die Messung des Hintergrundspektrums wurde die leere Graphitkammer bei einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsbetrieb über einen Zeitraum von 3600 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 2 ms und einer Pulslänge von 180  $\mu\text{s}$  wurde die Messkammer 324 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,8 \cdot 10^6$  Pulsen. Unter Berücksichtigung der Totzeit des Spektrometers ergibt sich eine Messzeit von 1326 s. Das Spektrum bis 12 MeV ist in Abbildung 61 auf Seite 132 dargestellt. In Tabelle 20 ist die Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der Messung präsentiert. Das Prompt-Gamma-Spektrum der leeren Graphitkammer weist hauptsächlich Gamma-Linien von  $^{12}\text{C}$  auf. Die hochenergetischen Gamma-Linien von Eisen ab 7,6 MeV stammen von der Aktivierung des Neutronenrohrgehäuses. Sie werden durch den Graphit zwischen dem Neutronenrohr und Detektor nicht vollständig abgeschirmt. Der überwiegende Teil der restlichen Gamma-Linien stammt von der Aktivierung der  $^6\text{Li}$ -Abschirmung und der Aluminium-Schutzkappe des Detektors. Eine Probenanalyse des  $^6\text{LiF}$ -Materials mit dem Rasterelektronenmikroskop (EDX) hat gezeigt, dass geringe Spuren von Chlor in der Abschirmung enthalten sind. Der große Neutroneneinfangswirkungsquerschnitt von  $^{35}\text{Cl}$  in Verbindung mit der geringen Entfernung zum Detektor-Kristall führt zu relativ starken Gamma-Linien im Hintergrundspektrum. Die verzögerten Gamma-Linien von  $^{27}\text{Mg}$  werden durch (n, p)-Reaktion von schnellen Neutronen mit dem Aluminium der Schutzkappe erzeugt. Es sind auch Interferenzen von verschiedenen Reaktionen zu beobachten, so wird die Gamma-Linie bei 1779 keV sowohl durch die Reaktion  $^{28}\text{Si}(\text{n}, \text{p})^{28}\text{Al}$  ( $\sigma = 0,22 \text{ b}$ ), als auch durch die Reaktion  $^{28}\text{Si}(\text{n}, \text{n}')^{28}\text{Si}$  ( $\sigma = 0,41 \text{ b}$ ) und  $^{27}\text{Al}(\text{n}, \gamma)^{28}\text{Al}$  ( $\sigma = 0,232 \text{ b}$ ) erzeugt. Direkt nach der Messung des Prompt-Gamma-Spektrums wurde über eine Messzeit von 60 s das Spektrum der verzögerten Gammas aufgenommen. In Abbildung 62 auf Seite 133 ist der Energiebereich bis 3 MeV dargestellt. Die stärksten Signale stammen von der Aktivierung des Germanium-Kristalls und der Aluminium-Abschirmung mit schnellen Neutronen. Die Halbwertszeit von  $^{28}\text{Al}$  liegt bei 2,25 min, von  $^{27}\text{Mg}$  bei 9,46 min und von  $^{24}\text{Na}$  bei 15,03 h [Erdtmann1986, S. 548].

**Tabelle 20:** Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Prompt-Gamma-Spektrum der leeren Graphitkammer.

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [ $\text{s}^{-1}$ ]
139	$^{75\text{m}}\text{Ge}^*$	164520 (1036)	273238 (523)	62,04 (39)
159	$^{77\text{m}}\text{Ge}^*$	5303 (965)	154535 (393)	2,00 (36)
198	$^{71\text{m}}\text{Ge}^*$	191382 (918)	177864 (422)	72,17 (36)
472	$^{24\text{m}}\text{Na}^*$	12761 (253)	26451 (163)	4,81 (10)
511		32227 (390)	30145 (174)	12,15 (15)
517	$^{35}\text{Cl}$	7198 (210)	36212 (190)	2,71 (8)
661	$^{137}\text{Cs}$	5859 (221)	19573 (140)	2,21 (8)
835	$^{53}\text{Cr}$	1319 (176)	11776 (109)	0,50(7)
844	$^{27}\text{Mg}^*$	6815 (213)	11776 (109)	2,57 (8)
1014	$^{27}\text{Mg}^*$	2554 (153)	10460 (102)	0,96 (6)
1165	$^{35}\text{Cl}$	5732 (164)	10630 (103)	2,16 (6)
1262	$^{12}\text{C}$	9138 (280)	10874 (104)	3,45 (11)
1779	$^{28}\text{Al}$	3392 (135)	9500 (97)	1,28 (5)
1943	$^{40}\text{Ca}$	1777 (111)	10425 (102)	0,67 (4)
1951	$^{35}\text{Cl}$	4410 (158)	10366 (102)	1,66 (6)

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]
1959	<sup>35</sup> Cl	2688 (120)	9684 (98)	1,01 (5)
2223	<sup>1</sup> H	18099 (308)	10592 (103)	6,82 (12)
2864	<sup>35</sup> Cl	918 (114)	5032 (71)	0,35 (4)
3173	SE- <sup>12</sup> C	1848 (108)	4780 (69)	0,70 (4)
3684	<sup>12</sup> C	5256 (118)	4337 (66)	1,98 (4)
3923	DE- <sup>12</sup> C	1789 (106)	4414 (66)	0,67 (4)
4434	SE- <sup>12</sup> C	5407 (141)	10238 (102)	2,04 (5)
4945	<sup>12</sup> C	13232 (296)	6768 (82)	4,99 (11)
5600	<sup>35</sup> Cl	1306 (188)	3786 (62)	0,49 (7)
6111	<sup>35</sup> Cl	2815 (114)	4669 (68)	1,06 (4)
6130	<sup>16</sup> N	1255 (113)	5665 (75)	0,47 (4)
6609	DE- <sup>56</sup> Fe	1906 (245)	3920 (63)	0,72 (9)
7120	SE- <sup>56</sup> Fe	1811 (97)	4247 (65)	0,68 (4)
7631	<sup>56</sup> Fe	1434 (83)	2786 (53)	0,54 (3)
7645	<sup>56</sup> Fe	1294 (80)	2490 (50)	0,49 (3)
7790	<sup>35</sup> Cl	385 (74)	846 (29)	0,15 (3)
8786	SE- <sup>54</sup> Fe	144 (30)	240 (15)	0,05 (1)
9297	<sup>54</sup> Fe	174 (17)	212 (15)	0,07 (1)

## 10.2. Aktivierung von Einzelproben

### 10.2.1. Harnstoff

Es wurde eine 1 kg schwere Harnstoffprobe (CH<sub>4</sub>N<sub>2</sub>O) ( $\rho = 1,32 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) in einem Aluthenbeutel<sup>48</sup> mit einer Quellstärke von  $8\cdot 10^6 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$  im Pulsmodus untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 1 ms und einer Pulslänge von 35  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 65,77 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,9\cdot 10^6$  Pulsen. Über eine Messzeit von 1879 s wurde das Prompt-Gamma-Spektrum der Probe aufgezeichnet. Das Ziel der Untersuchung war die Aktivierung des Stickstoffes in der Probe, welcher zu 46,6 Gew.-% im Harnstoff enthalten ist. Insgesamt sind 467 g Stickstoff und 67 g Wasserstoff bestrahlt worden. Die Aktivierung war erfolgreich, aber es konnte nur die Haupt-Gamma-Linie bei 10829 keV ( $\sigma_\gamma = 0,0113 \text{ b}$ ) nachgewiesen werden. In Abbildung 63 auf Seite 134 ist ein Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums mit den relevanten Gamma-Linien dargestellt, die zugehörige Analyse der Gamma-Linien ist in Tabelle 21 präsentiert.

**Tabelle 21:** Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Prompt-Gamma-Spektrum von Harnstoff.

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]	NWG [g]
1779	<sup>28</sup> Al	13293 (327)	23621 (154)	23,71 (17)	
1951	<sup>35</sup> Cl	9346 (224)	20986 (145)	4,97 (12)	
1959	<sup>35</sup> Cl	5292 (206)	18910 (138)	2,82 (12)	
2223	<sup>1</sup> H	71803 (641)	48289 (220)	38,21 (34)	0,6
10318	SE- <sup>14</sup> N	34 (20)	135 (12)	0,018 (11)	

<sup>48</sup> Aluthen ist eine Verbundfolie, bestehend aus der Trägerfolie Zellglas, einer Aluminiumschicht von 12  $\mu\text{m}$  Dicke und einer Polyethylenschicht von 75  $\mu\text{m}$ .

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]	NWG [g]
10829	<sup>14</sup> N	29 (9)	89 (9)	0,015 (5)	456

NWG =  $3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{Element}}}$

### 10.2.2. Natriumchlorid

Es wurde eine 900 g schwere Natriumchlorid-Probe (NaCl) in einem PE-Behälter bestrahlt, um die Energie- und Effizienzkalibrierung des Spektrometers bis 10 MeV anhand des Prompt-Gamma-Spektrums durchzuführen. <sup>35</sup>Cl ist zu 45,9 Gew.-% im NaCl enthalten und lässt sich hervorragend aktivieren. Leider ist die <sup>6</sup>Li-Abschirmung des Detektors mit Spuren von Chlor verunreinigt, wodurch ein erhöhter Untergrundanteil bei den <sup>35</sup>Cl-Gamma-Linien der NaCl-Probe gemessen wird. Das Prompt-Gamma-Spektrum der NaCl-Probe wurde über eine Messzeit von 1117 s bei einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus aufgenommen. Bei einer Repetitionszeit von 2 ms und einer Pulslänge von 180 μs wurde die Probe 279 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,6 \cdot 10^6$  Pulsen. In Abbildung 64 auf der Seite 135 ist ein Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums der NaCl-Probe mit den Haupt-Gamma-Linien in den Energiebereichen 400 – 800 keV und 1900 – 2300 keV dargestellt. In Tabelle 22 sind die Zählraten der Haupt-Gamma-Linien von <sup>35</sup>Cl, mit und ohne Probe, aufgelistet. Unter Berücksichtigung der molaren Masse von NaCl (58,44 g·mol<sup>-1</sup>), seiner Dichte (2,17 g·cm<sup>-3</sup>) und dem totalen mikroskopischen Wirkungsquerschnitt bei 25 meV von Chlor (50,34 b), ergibt sich ein makroskopischer Wirkungsquerschnitt von 1,13 cm<sup>-1</sup> bzw. eine mittlere freie Weglänge der thermischen Neutronen von 0,89 cm. Die NaCl-Probe in dem PE-Behälter war ca. 8,3 cm hoch und hatte einen Durchmesser von 8 cm. Wird die mittlere freie Weglänge der thermischen Neutronen in der Probe berücksichtigt, dann sind 60,4 % des NaCl aktiviert worden. Dieser Faktor geht in die Berechnung der Nachweisgrenzen mit ein.

**Tabelle 22:** Analyse der Haupt-Gamma-Linien von <sup>35</sup>Cl, mit und ohne NaCl-Probe.

Energie [keV]	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]				NWG <sup>a</sup> [g]
	Ohne NaCl	Mit NaCl	Untergrundfläche mit NaCl	Differenz der Zählraten	
517	2,75 (3)	9,11 (6)	45006 (212)	6,36 (7)	22
1951	1,66 (3)	4,75 (5)	15133 (123)	3,09 (6)	27
1959	1,02 (2)	2,65 (3)	17210 (131)	1,63 (4)	54
2864	0,43 (1)	1,12 (2)	6129 (78)	0,69 (2)	78
6611	1,07 (2)	2,98 (4)	4725 (69)	1,91 (4)	24

<sup>a</sup> Bei der Berechnung der NWG wurde die Differenzzählrate und die Untergrundfläche mit NaCl zugrunde gelegt.

$$\text{NWG} = 3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{Element}}}$$

### 10.2.3. Blei, Cadmium und Quecksilber

Blei lässt sich mit thermischen Neutronen schwer aktivieren. Für den thermischen Neutroneneinfang mit Gamma-Emission hat der Wirkungsquerschnitt der Haupt-Gamma-Linie bei 7378 keV einen Wert von 0,137 b. Für Reaktionen mit schnellen Neutronen sind die Wirkungsquerschnitte größer, z. B. liegt der Wirkungsquerschnitt für die <sup>208</sup>Pb(n, 2n)<sup>207m</sup>Pb-Reaktion bei 0,75 b. Durch diese Reaktion werden wiederum schnelle Neutronen freigesetzt, wodurch mehr Bleikerne aktiviert werden können. Die Blei-Probe mit einem Volumen von 10 x 10 x 10 cm<sup>3</sup> war 10952 g schwer und diente

ursprünglich der Abschirmung von Gamma-Strahlung. Im Gegensatz zum Blei lassen sich Cadmium und Quecksilber mit thermischen Neutronen sehr gut aktivieren. Die Einfangwirkungsquerschnitte sind bei Quecksilber mit 384 b und bei Cadmium mit 2522 b relativ hoch. Als Cadmium-Probe diente ein 8 g schweres Blech in einer Glasflasche, seine Dicke betrug 1,5 mm und es hatte eine Fläche von  $6,2 \times 1 \text{ cm}^2$ . Die Quecksilber-Probe, mit einem Gewicht von 1660 g, befand sich in einem PE-Behälter mit einem Durchmesser von 9 cm. Alle Proben wurden separat mit einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus über einen Zeitraum von 1200 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 1 ms und einer Pulslänge von 65  $\mu\text{s}$  wurden die Proben jeweils 78 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,2 \cdot 10^6$  Pulsen. In Abhängigkeit von der Totzeit des Spektrometers variierte die Messzeit zwischen 847 und 865 s. Die drei Prompt-Gamma-Spektren werden in Abbildung 65 auf Seite 136 miteinander verglichen. In Tabelle 23 ist die Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der Messungen präsentiert.

**Tabelle 23:** Analyse der Haupt-Gamma-Linien von  $^{113}\text{Cd}$ ,  $^{199}\text{Hg}$  und  $^{207\text{m}}\text{Pb}$ .

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [ $\text{s}^{-1}$ ]	NWG [g]
368	$^{199}\text{Hg}$	22906 (396)	65109 (255)	27,04 (47)	2,4
558	$^{113}\text{Cd}$	7848 (196)	18464 (136)	9,18 (23)	0,06
570	$^{207\text{m}}\text{Pb}^*$	2025 (234)	20587 (143)	2,34 (27)	232
651	$^{113}\text{Cd}$	1030 (130)	13641 (117)	1,20 (15)	0,36
661	$^{137}\text{Cs} + ^{199}\text{Hg}$	5770 (268)	19861 (141)	6,81 (32)	7,4 <sup>a</sup>
886	$^{199}\text{Hg}$	1167 (172)	15677 (125)	1,38 (20)	23
1064	$^{207\text{m}}\text{Pb}^*$	1651 (157)	9469 (97)	1,91 (18)	387

<sup>a</sup> Für die NWG von Quecksilber wurde die Netto-Peakfläche entsprechend der  $^{137}\text{Cs}$ -Interferenz korrigiert.

$\text{NWG} = 3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{Element}}}$

Aufgrund der Selbstabsorption der Neutronen und Photonen in den Proben werden die Nachweisgrenzen für die jeweiligen Elemente überschätzt. Für die Berechnung der Nachweisgrenzen sind Korrekturfaktoren notwendig, die vor allem die mittleren freien Weglängen der Neutronen in den Proben berücksichtigt. In Tabelle 24 sind die Charakteristika der drei Schwermetalle und die daraus resultierenden Absorptionseigenschaften für thermische und schnelle Neutronen aufgelistet.

**Tabelle 24:** Eindringtiefe thermischer Neutronen in Cadmium, Quecksilber und Blei. Die Wirkungsquerschnitte wurden aus den Datenbanken ENDF/B-VI, JEFF-3.0 und BROND-2.2 entnommen.

		Cadmium	Quecksilber	Blei
Molare Masse	[ $\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ]	112,41	200,59	207,2
Dichte	[ $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ]	8,64	13,55	11,34
Totaler Wirkungsquerschnitt bei 25 meV	[b]	2478	412,34	11,46
Totaler Wirkungsquerschnitt bei 14 MeV	[b]	4,62	5,30	5,40
Makroskopischer Wirkungsquerschnitt bei 25 meV	[ $\text{cm}^{-1}$ ]	114,70	16,77	0,38
Makroskopischer Wirkungsquerschnitt bei 14 MeV	[ $\text{cm}^{-1}$ ]	0,21	0,22	0,18
Mittlere freie Weglänge für thermische Neutronen	[cm]	0,0087	0,060	2,65
Mittlere freie Weglänge für schnelle Neutronen	[cm]	4,68	4,64	5,62
Probendurchmesser	[cm]	0,15	9	10

Die mittlere freie Weglänge der thermischen Neutronen in Cadmium und Quecksilber ist so gering, dass in diesen beiden Fällen nur ein geringer Probenteil aktiviert wurde. Zwar dringen die schnellen Neutronen tiefer in das Cadmium und Quecksilber ein, aber sie führen zu einer geringeren Aktivierung. Aus der mittleren freien Weglänge für thermische Neutronen ergibt sich, dass das Cadmium-Blech nur zu einem Bruchteil von 13,4 % (1,07 g) mit thermischen Neutronen aktiviert wurde. Dieser Faktor muss bei der Berechnung der Nachweisgrenze berücksichtigt werden. Im Falle der Quecksilber-Probe ist der Anteil, der aktiviert wird, noch weitaus geringer, da hier die Absorption der Gamma-Strahlung in der Probe zu einer deutlich geringeren Zählrate führt. Der Detektor sieht im Wesentlichen nur die halbe Aktivität, sodass letztendlich nur 4,25 % (70,55 g) der Probe zur Netto-Peakfläche beitragen. Beim Blei spielt die Neutronenabsorption in der Probe eine untergeordnete Rolle, die Absorption der Gamma-Strahlung wirkt entscheidend auf die Größe der Netto-Peakfläche. Die Intensität der Gamma-Linie bei 570 keV ist hinter einer Schichtdicke von 1 cm Blei auf knapp 20 % abgesunken, genauso für die Gamma-Linie bei 1064 keV hinter 2 cm Blei. Für die zu 100 % aktivierte Blei-Probe ergibt sich daraus, dass der Detektor nur 10 (570 keV) bzw. 20 % (1064 keV) der Blei-Aktivität sieht. Bei den Berechnungen der Nachweisgrenzen in Tabelle 23 wurden die Einflüsse der Selbstabsorption berücksichtigt.

#### 10.2.4. Gadolinium

Der mikroskopische Wirkungsquerschnitt für den Einfang thermischer Neutronen beträgt bei Gadolinium 48770 b und ist damit größer, als bei allen anderen Elementen. Es lassen sich selbst kleinste Spuren an Gadolinium nachweisen. Für die Messung des Prompt-Gamma-Spektrums wurden 30,4 g Gadoliniumnitrat ( $\text{Gd}(\text{NO}_3)_3$ ) ( $\rho = 2,3 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) in einem PE-Behälter mit einer Quellstärke von  $8\cdot 10^6 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$  im Pulsmodus über einen Zeitraum von 3600 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 2 ms und einer Pulslänge von 180  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 324 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,8\cdot 10^6$  Pulsen. In Abbildung 66 auf Seite 137 ist ein Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums in den Energiebereichen 100 – 300 und 700 – 1200 keV dargestellt. Die Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der Messung ist in Tabelle 25 präsentiert.

**Tabelle 25:** Analyse der Haupt-Gamma-Linien von  $^{157}\text{Gd}$ .

Energie [keV]	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [ $\text{s}^{-1}$ ]	NWG [mg]
182	5432 (307)	138709 (372)	2,06 (12)	6,3
897	1639 (199)	19069 (138)	0,24 (6)	7,7
944	1981 (195)	18013 (134)	0,55 (9)	6,2
962	1317 (191)	17605 (133)	0,26 (7)	9,2
977	1269 (189)	17161 (131)	0,14 (3)	9,5
1108	931 (172)	14302 (120)	0,18 (5)	11,8
1119	946 (171)	14109 (119)	0,26 (5)	11,5
1184+1186+1187	1181 (158)	10233 (101)	0,46 (5)	7,8

$\text{NWG} = 3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{Element}}}$

Die Auswertung des Spektrums lässt darauf schließen, dass nicht das komplette Gadolinium aktiviert wurde. Aus dem totalen mikroskopischen Wirkungsquerschnitt von 49113 b des Gadoliniums, der molaren Masse des Gadoliniumnitrats von  $343,26 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  und der Dichte ergibt sich ein makroskopischer Wirkungsquerschnitt von  $198,17 \text{ cm}^{-1}$  bzw. eine mittlere freie Weglänge der thermischen Neutronen von 0,005 cm. Die zylindrische Gd-Probe in dem PE-Behälter hatte eine

Höhe von 4,2 cm und einen Radius von 1 cm. Daraus ergibt sich, dass gerade einmal 1,4 % der Probe aktiviert wurden, dieser Anteil wird bei der Berechnung der Nachweisgrenze berücksichtigt.

### 10.2.5. Strontium

Der mikroskopische Einfangswirkungsquerschnitt für thermische Neutronen ist bei Strontium mit 1,3 b in etwa halb so groß wie der von Eisen. Um eine messbare Aktivität von Strontium zu erhalten, ist eine größere Menge für die Aktivierung notwendig. Es wurden 700 g Strontiumnitrat ( $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ ) und 460 g Strontiumcarbonat ( $\text{SrCO}_3$ ) in separaten PE-Behältern übereinandergestapelt und mit einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus über einen Zeitraum von 3600 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 2 ms und einer Pulslänge von 180  $\mu\text{s}$  wurden die Proben 324 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,8 \cdot 10^6$  Pulsen. In Abbildung 67 auf Seite 138 ist Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums in den Energiebereichen 700 – 1000 keV und 1800 – 2000 keV dargestellt. Die Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der Messung ist in Tabelle 26 präsentiert.

**Tabelle 26:** Analyse der Haupt-Gamma-Linien von  $^{87}\text{Sr}$ .

Energie [keV]	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [ $\text{s}^{-1}$ ]	NWG [g]
898	2620 (268)	17458 (132)	0,99 (10)	6,0
1836	1768 (232)	10557 (103)	0,67 (9)	6,9

$$\text{NWG} = 3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{Element}}}$$

## 10.3. Charakterisierung verschiedener 25-l-Probenfässer

Die Probenfässer wurden mit dem Ziel des qualitativen Nachweises chemotoxischer Stoffe in Beton hergestellt. Dafür wurden die drei Elemente Blei, Cadmium und Quecksilber ausgewählt, um den experimentellen Nachweis sowohl mit schnellen als auch thermischen Neutronen zu erbringen. Die Herstellung der Probenfässer wurde im vorherigen Kapitel beschrieben. Besonders viel Aufwand wurde in die Herstellung von Probenfass Nr. 2 investiert, damit diese Probe eine homogene Verteilung der Schwermetalle Cd, Hg und Pb repräsentiert. Alle Fässer wurden im Mittelpunkt der Graphitkammer positioniert, genaugenommen im Schnittpunkt der Neutronenrohr- und Detektor-Kristall-Achse.

### 10.3.1. Leeres Stahlfass

Die Messung des Prompt-Gamma-Spektrums des leeren Stahlfasses wurde schon in Abschnitt 8.3 dargestellt. Anhand der Prompt-Gamma-Linien von Eisen wurde die Bestimmung der Photopeak-Effizienz bis 10 MeV durchgeführt. Für die Messung des Prompt-Gamma-Spektrums wurde das leere Stahlfass bei einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsbetrieb über einen Zeitraum von 3600 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 2 ms und einer Pulslänge von 180  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 324 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,8 \cdot 10^6$  Pulsen. Unter Berücksichtigung der Totzeit des Spektrometers ergab sich eine Messzeit von 1284 s. In Abbildung 68 auf Seite 139 ist ein Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums im Energiebereich von 300 bis 1100 keV dargestellt. Die Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der Messung ist in Tabelle 27 präsentiert.



**Tabelle 27:** Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Prompt-Gamma-Spektrum des leeren Stahlfasses.

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]
352	<sup>56</sup> Fe	21815 (435)	69797 (264)	8,49 (17)
367	<sup>56</sup> Fe	3255 (204)	57640 (240)	1,27 (8)
472	<sup>24m</sup> Na	9229 (359)	36650 (191)	3,59 (14)
517	<sup>35</sup> Cl	357 (157)	52567 (229)	0,14 (6)
661	<sup>137</sup> Cs	5390 (242)	17688 (133)	2,10 (9)
692	<sup>56</sup> Fe	7692 (294)	23720 (154)	3,00 (11)
786+788	<sup>35</sup> Cl	5462 (230)	20380 (143)	2,13 (9)
811	<sup>57</sup> Fe	1457 (150)	17353 (132)	0,57 (6)
844	<sup>27</sup> Mg	7018 (234)	15186 (123)	2,73 (9)
898	<sup>56</sup> Fe	3196 (203)	16036 (127)	1,24 (8)
921	<sup>56</sup> Fe	861 (125)	12704 (113)	0,34 (5)
1014	<sup>27</sup> Mg	2409 (119)	14727 (121)	0,94 (5)
1019	<sup>56</sup> Fe	2719 (142)	14303 (120)	1,06 (6)
1779	<sup>27</sup> Al	2772 (201)	10176 (101)	1,08 (8)

### 10.3.2. Probenfass Nr. 1 – Trockener Beton

Das Probenfass Nr. 1 mit dem trockenen Beton wurde für den direkten Vergleich mit Probenfass Nr. 2 hergestellt. Von besonderem Interesse sind die dominanten Gamma-Linien im Beton-Spektrum, die zu Interferenzen mit den Gamma-Linien der gesuchten Elemente führen können. Das 25-l-Probenfass mit einem Gesamtgewicht von 45,3 kg wurde mit einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6$  n·s<sup>-1</sup> im Pulsmodus über einen Zeitraum von 3200 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 2 ms und einer Pulslänge von 180 µs wurde die Probe 288 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,6 \cdot 10^6$  Pulsen. In Abbildung 69 und 70 auf den Seiten 140 und 141 sind Ausschnitte des Prompt-Gamma-Spektrums in den Energiebereichen 300 – 1100 keV und 1850 – 5000 keV dargestellt. Für die Berechnung der Nachweisgrenzen in Tabelle 28 wurden die Ergebnisse der PGNA-Charakterisierung in Budapest (siehe Anhang A7) genutzt, um die Gew.-%-Anteile der im Beton enthaltenen Elemente zu bestimmen.

**Tabelle 28:** Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Prompt-Gamma-Spektrum von Probenfass Nr. 1.

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]	NWG [g]
352	<sup>56</sup> Fe	12913 (384)	87565 (296)	5,85 (17)	
367	<sup>56</sup> Fe	2054 (209)	79403 (282)	0,93 (9)	
472	<sup>24m</sup> Na	8436 (291)	51252 (226)	3,82 (13)	
517	<sup>35</sup> Cl	232 (140)	73626 (271)	0,11 (6)	
661	<sup>137</sup> Cs	4376 (191)	28416 (169)	1,98 (9)	
692	<sup>56</sup> Fe	4916 (213)	20811 (144)	2,23 (10)	
786+788	<sup>35</sup> Cl	5968 (271)	19467 (140)	2,71 (12)	
811	<sup>57</sup> Fe	657 (112)	13915 (118)	0,30 (5)	
844	<sup>27</sup> Mg	5293 (266)	19120 (138)	2,40 (12)	
898	<sup>56</sup> Fe	1217 (111)	14301 (120)	0,55 (5)	

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]	NWG [g]
921	<sup>56</sup> Fe	224 (78)	14804 (122)	0,10 (4)	
1014	<sup>27</sup> Mg	2024 (132)	12549 (112)	0,92 (6)	
1019	<sup>56</sup> Fe	1514 (92)	12666 (113)	0,69 (4)	
1779	<sup>27</sup> Al+ <sup>28</sup> Si*	6305 (233)	10752 (104)	2,86 (11)	1099 <sup>a</sup>
1943	<sup>40</sup> Ca	1775 (133)	7910 (89)	0,80 (6)	502
1951	<sup>35</sup> Cl	2246 (126)	6854 (83)	1,02 (6)	
1959	<sup>35</sup> Cl	1309 (116)	6038 (78)	0,59 (5)	
2093	<sup>28</sup> Si	1417 (156)	5975 (77)	0,64 (7)	2271
2223	<sup>1</sup> H	17747 (319)	12255 (111)	8,04 (14)	2,9
4422	SE- <sup>28</sup> Si	866 (150)	6833 (83)	0,39 (7)	
4434	SE- <sup>12</sup> C	1839 (148)	6400 (80)	0,83 (7)	
4933+4945	<sup>28</sup> Si+ <sup>12</sup> C	12797 (384)	11126 (105)	5,80 (17)	

\* Für die NWG von Silizium wurde die Netto-Peakfläche entsprechend der <sup>27</sup>Al-Interferenz korrigiert.

$NWG = 3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{Element}}}$

### 10.3.3. Probenfass Nr. 2 – Trockener Beton mit Schwermetallen

Die Herstellung von Probenfass Nr. 2 ist in Abschnitt 9.2 genau beschrieben. Es wurde besonders Wert daraufgelegt, dass die Schwermetalle homogen in der Betonprobe verteilt sind. Die Konzentrationen der Schwermetalle wurden über die Menge der zugegebenen Chemikalien festgelegt, für Cadmium waren es 79 ppm, für Quecksilber 105 ppm und für Blei 0,68 %. Das Probenfass mit einem Gesamtgewicht von 45,8 kg wurde mit einer Quellstärke von  $2,1 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus über einen Zeitraum von 1917 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 1 ms und einer Pulslänge von 35  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 67,1 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,92 \cdot 10^6$  Pulsen. In Abbildung 71 auf Seite 142 ist ein Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums im Energiebereich von 300 bis 1100 keV dargestellt.

**Tabelle 29:** Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Prompt-Gamma-Spektrum von Probenfass Nr. 2.

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]	NWG [g]
352	<sup>56</sup> Fe	20677 (505)	164514 (406)	22,48 (55)	
367+368	<sup>56</sup> Fe+ <sup>199</sup> Hg	3869 (339)	101853 (319)	4,21 (37)	2,4 <sup>a</sup>
412	<sup>54</sup> Fe	1282 (299)	108547 (329)	1,39 (33)	
472	<sup>24m</sup> Na	12578 (397)	80213 (283)	13,67 (43)	
558	<sup>113</sup> Cd	14548 (483)	58933 (243)	15,81 (53)	0,2
570	<sup>207m</sup> Pb	191 (103)	43186 (208)	0,21 (11)	400 <sup>b</sup>
651	<sup>113</sup> Cd	2970 (378)	42141 (205)	3,23 (41)	0,6
661	<sup>137</sup> Cs+ <sup>199</sup> Hg	2716 (280)	40321 (201)	2,95 (30)	2,9 <sup>a</sup>
692	<sup>56</sup> Fe	9042 (472)	44122 (210)	9,83 (51)	
786+788	<sup>35</sup> Cl	8138 (426)	48510 (220)	8,85 (46)	
811	<sup>57</sup> Fe	1145 (182)	35530 (188)	1,24 (20)	
844	<sup>27</sup> Mg	9921 (448)	39257 (198)	10,78 (49)	
898	<sup>56</sup> Fe	3024 (245)	29192 (171)	3,29 (27)	
921	<sup>56</sup> Fe	884 (201)	33186 (182)	0,96 (22)	
1014	<sup>27</sup> Mg	2965 (183)	25164 (159)	3,22 (20)	

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]	NWG [g]
1019	<sup>56</sup> Fe	2507 (146)	25562 (160)	2,73 (16)	

<sup>a</sup> Für die NWG von Quecksilber wurde die Netto-Peakfläche entsprechend der <sup>56</sup>Fe- und <sup>137</sup>Cs-Interferenzen korrigiert.

<sup>b</sup> Die NWG-Grenze von Blei liegt über der Menge, die dem Beton zugegeben wurde. Darum wurde der Wert aus Abbildung 89 in Abschnitt 12.2 eingefügt.

$$\text{NWG} = 3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{Element}}}$$

### 10.3.4. Probenfass Nr. 3 – Betonfass mit festen Schwermetallabfällen

Das Probenfass Nr. 3, mit 20,5 kg Beton, wurde hergestellt, um den Einfluss einer inhomogenen Probenzusammensetzung zu untersuchen. Ein 2550 g schwerer Blei-Stein wurde in der Mitte des Fasses einbetoniert. Es wurden 204 g Quecksilber (1 Gew.-%), 177 g Blei (0,86 Gew.-%) und 20,5 g Bor (0,1 Gew.-%) dem Beton über das Zugabewasser beigemischt. Das Probenfass wurde mit einer Quellstärke von  $2,1 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus über einen Zeitraum von 1825 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 1 ms und einer Pulslänge von 35  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 63,9 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,83 \cdot 10^6$  Pulsen. In Abbildung 72 auf Seite 143 ist ein Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums im Energiebereich von 300 bis 1100 keV dargestellt. Die Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der Messung ist in Tabelle 30 präsentiert. Bei der Berechnung der Nachweisgrenze für Blei wurde die Selbstabsorption in der Probe analog zur Einzelprobe berücksichtigt.

**Tabelle 30:** Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Prompt-Gamma-Spektrum von Probenfass Nr. 3.

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]	NWG [g]
352	<sup>56</sup> Fe	19678 (502)	188671 (434)	21,39 (55)	
367+368	<sup>56</sup> Fe+ <sup>199</sup> Hg	22675 (520)	166777 (408)	24,65 (57)	12 <sup>a</sup>
412	<sup>54</sup> Fe	1137 (203)	100980 (318)	1,24 (22)	
472	<sup>24m</sup> Na	15551 (576)	141614 (376)	16,90 (63)	
477	<sup>10</sup> B	11816 (791)	188093 (434)	12,84 (86)	2,3
570	<sup>207m</sup> Pb*	922 (189)	51780 (228)	1,00 (21)	202
661	<sup>137</sup> Cs+ <sup>199</sup> Hg	3476 (302)	49137 (222)	3,78 (33)	84 <sup>a</sup>
692	<sup>56</sup> Fe	7826 (410)	40998 (202)	8,51 (45)	
786+788	<sup>35</sup> Cl	7377 (372)	36054 (190)	8,02 (40)	
811	<sup>57</sup> Fe	1030 (206)	32293 (180)	1,12 (22)	
844	<sup>27</sup> Mg	9812 (350)	36892 (192)	10,67 (38)	
886	<sup>199</sup> Hg	315 (116)	14475 (120)	0,34 (13)	231
898	<sup>56</sup> Fe	2373 (214)	30665 (175)	2,58 (23)	
921	<sup>56</sup> Fe	804 (204)	27486 (166)	0,87 (22)	
1014	<sup>27</sup> Mg	4117 (224)	27700 (166)	4,48 (24)	
1019	<sup>56</sup> Fe	2105 (176)	29555 (172)	2,29 (19)	
1064	<sup>207m</sup> Pb*	221 (102)	19509 (140)	0,24 (11)	1034

<sup>a</sup> Für die NWG von Quecksilber wurde die Netto-Peakflächen entsprechend der <sup>56</sup>Fe- und <sup>137</sup>Cs-Interferenzen korrigiert.

$$\text{NWG} = 3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{Element}}}$$

### 10.3.5. Probenfass Nr. 4 – Metallspäne aus der Mechanischen-Werkstatt

Probenfass Nr. 4 wurde hergestellt, um die Charakterisierung einer Probe „ohne“ Moderationseigenschaften zu untersuchen. Die Metallspäne mit einem Gesamtgewicht von 12 kg wurden in dem 25-l-Fass nur leicht verpresst. Sie enthalten verschiedenen Legierungen, zum überwiegenden Teil Eisenlegierungen wie Stahl. Das Probenfass wurde mit einer Quellstärke von  $2,1 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus über einen Zeitraum von 1880 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 1 ms und einer Pulslänge von 35  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 65,8 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,88 \cdot 10^6$  Pulsen. Es konnten in dem Prompt-Gamma-Spektrum der Metallprobe Chrom ( $\sigma_c = 3,04 \text{ b}$ ) und Nickel ( $\sigma_c = 4,39 \text{ b}$ ) nachgewiesen werden. In Abbildung 73 auf Seite 144 ist ein Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums im Energiebereich von 300 bis 1100 keV dargestellt. Die Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der Messung ist in Tabelle 31 präsentiert. Das Verzögerte-Spektrum der Metallprobe wurde direkt nach Abschaltung der Neutronenquelle, über einen Zeitraum von 60 s, gemessen. In diesem Spektrum konnten die verzögerten Aktivitäten von  $^{56}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} = 2,58 \text{ h}$ ) bzw.  $^{52}\text{V}$  ( $T_{1/2} = 3,75 \text{ min}$ ) nachgewiesen werden. Das Verzögerte-Spektrum bis 2500 keV ist in Abbildung 74 auf Seite 145 dargestellt. Die Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Verzögerten-Gamma-Spektrum ist in Tabelle 32 präsentiert.

**Tabelle 31:** Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Prompt-Gamma-Spektrum von Probenfass Nr. 4.

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [ $\text{s}^{-1}$ ]
352	$^{56}\text{Fe}$	45941 (863)	183768 (429)	49,94 (97)
367	$^{56}\text{Fe}$	5054 (279)	877797 (296)	5,49 (30)
412	$^{54}\text{Fe}$	2433 (207)	79783 (282)	2,64 (23)
465	$^{58}\text{Ni}$	1051 (308)	71753 (268)	1,14 (33)
472	$^{24}\text{Mg}$	14018 (340)	124028 (352)	15,24 (37)
477	$^{10}\text{B}$	2043 (531)	177647 (421)	2,22 (58)
661	$^{137}\text{Cs}$	740 (151)	333329 (183)	0,80 (16)
692	$^{56}\text{Fe}$	20126 (537)	71413 (267)	21,88 (23)
749	$^{53}\text{Cr}$	1983 (247)	39925 (200)	2,16 (27)
786+788	$^{35}\text{Cl}$	7826 (408)	58761 (242)	8,51 (44)
811	$^{57}\text{Fe}$	2773 (288)	31101 (176)	3,01 (31)
835	$^{53}\text{Cr}$	3373 (244)	39379 (198)	3,67 (27)
844+847	$^{27}\text{Mg} + ^{56}\text{Mn}$	9604 (355)	56395 (237)	10,44 (39)
898	$^{56}\text{Fe}$	6572 (309)	39841 (200)	7,14 (34)
921	$^{56}\text{Fe}$	1817 (171)	22305 (149)	1,98 (19)
1014	$^{27}\text{Mg}$	5597 (228)	47539 (218)	6,08 (25)
1019	$^{56}\text{Fe}$	6587 (177)	47184 (217)	7,16 (19)
1131	$^{35}\text{Cl}$	1346 (269)	35876 (189)	1,46 (29)
1163+1165	$^{35}\text{Cl}$	9221 (287)	36611 (191)	10,02 (31)
1260	$^{56}\text{Fe}$	21217 (293)	32626 (181)	23,06 (32)
1359	$^{56}\text{Fe}$	4630 (574)	39782 (199)	5,03 (62)
1434	$^{52}\text{V}$	800 (194)	17103 (131)	0,87 (21)
8998	$^{58}\text{Ni}$	193 (70)	1833 (43)	0,21 (08)

**Tabelle 32:** Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Verzögerten-Gamma-Spektrum von Probenfass Nr. 4.

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]
139	<sup>75m</sup> Ge	16081 (193)	6488 (81)	268 (3,22)
159	<sup>77m</sup> Ge	608 (121)	4426 (67)	10,13 (2,02)
198	<sup>71m</sup> Ge	358 (100)	3089 (56)	5,97 (1,67)
661	<sup>137</sup> Cs	164 (44)	473 (22)	2,73 (73)
844+847	<sup>27</sup> Mg+ <sup>56</sup> Mn	1613 (57)	579 (24)	26,88 (95)
1014	<sup>27</sup> Mg	329 (27)	190 (14)	5,47 (45)
1369	<sup>24</sup> Na	18 (16)	112 (11)	0,30 (26)
1434	<sup>52</sup> V	93 (17)	104 (10)	1,55 (28)
1779	<sup>28</sup> Al	371(26)	55 (7)	6,18 (43)
1811	<sup>56</sup> Mn	105 (14)	31 (6)	1,75 (23)
2113	<sup>56</sup> Mn	36 (8)	30 (5)	0,60 (13)

#### 10.4. Charakterisierung einer Erdreich-Probe

Die Zeche Robert Müser<sup>49</sup> war ein Steinkohlen-Bergwerk in Bochum (Stadtteil Werne). Sie wurde in den 1920er Jahren durch den Zusammenschluss der Zechen Heinrich-Gustav, Caroline, Vollmond, Amalia und Prinz von Preußen gegründet. Die Umbenennung der Zeche Heinrich-Gustav (einschließlich Vollmond und Amalia) erfolgte am 1. Juli 1929 nach dem langjährigen Vorstands- bzw. Aufsichtsratsvorsitzenden Robert Müser. Zusätzlich zu einer Übertageanlage mit Zechenbahnhof, Ammoniakgewinnung und Gasometer wurde südwestlich des Schachtes Arnold (zentraler Förderschacht) eine Kohlenwäsche betrieben. Mit dem einsetzenden Ende des Steinkohlen-Bergbaus im Ruhrgebiet wurde die Zeche zum 31. März 1968 stillgelegt. In der Folgezeit wurden alle Schächte, bis auf den Schacht Arnold und den Wetterschacht Gustav, verfüllt. Heutzutage werden die verbliebenen Schächte von der „Deutschen Steinkohle AG“ zur Wassererhaltung genutzt. Mit den verbliebenen Anlagen wird das Grubenwasser gehoben, damit die Grubenbaue der weit entfernten Zechen, in denen noch Kohle gefördert wird, nicht unkontrolliert volllaufen.

**Abbildung 59:** Luftbildaufnahme der Zeche Robert Müser [Bildquelle: Privatarhiv].

<sup>49</sup> Robert Müser (\* 12. Oktober 1849 in Dortmund; † 30. Oktober 1927 ebenda) war ein deutscher Bergbauunternehmer. Er leitete die von seinem Vater mitgegründete Harpener Bergbau AG.

Im Betrieb der Kohlenwäsche wurden jede Menge zum Teil sehr giftige Stoffe benutzt, um die geförderte Kohle von den störenden Bestandteilen zu trennen. Mithilfe des PGNAA-Prototypsystems können Elemente wie Quecksilber, Blei oder Seltene Erden, die bei Abtrennung in der Kohlenwäsche anfallen, nachgewiesen werden.

Nachdem die Anlagen, mitsamt der Kohlenwäsche zurückgebaut wurden, ist eine Bodensanierung mit anschließender Renaturierung auf dem Gelände der Zeche durchgeführt worden. Trotzdem sollten Spuren der verwendeten Schadstoffe im Erdreich im Bereich der ehemaligen Kohlenwäsche zu finden sein. Es wurde am 22.03.2009 eine 10 kg schwere Probe des Erdreichs aus 50 cm Tiefe entnommen. Von dieser Probe wurden 5340 g in eine Blechdose gefüllt und anschließend mit dem PGNAA-System untersucht. Die Erdreich-Probe wurde über einen Zeitraum von 3000 s mit einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 2 ms und einer Pulslänge von 180  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 270 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,5 \cdot 10^6$  Pulsen. In Abbildung 75 auf Seite 146 ist ein Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums im Energiebereich von 300 bis 800 keV und 1700 bis 2300 keV dargestellt. Die Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der Messung ist in Tabelle 33 präsentiert. Anschließend wurde die Probe eine Woche lang bei 90 °C getrocknet und am 08.04.2009 erneut mit dem PGNAA-System unter denselben Bestrahlungsbedingungen charakterisiert. Um die Probe mit derselben Messzeit von 2178 s bei veränderter Totzeit des Spektrometers zu untersuchen, wurde die Bestrahlungszeit um 22 s auf 2978 s verkürzt. Die getrocknete Probe wurde 268 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,5 \cdot 10^6$  Pulsen. Durch die Trocknung ist Wasser und damit Wasserstoff aus der Probe verdunstet, infolge dessen verringerte sich das Gewicht der Erdreichprobe auf 4888 g. In Abbildung 75 auf Seite 146 ist ein Ausschnitt des Prompt-Gamma-Spektrums in den Energiebereichen 300 – 800 keV und 1700 – 2300 keV dargestellt. Die Analyse der gleichen Gamma-Linien wie in Tabelle 33 ist in Tabelle 34 präsentiert. Wie zu erwarten, war die Wasserstoff-Aktivität nach der Trocknung geringer. Die übrigen Elemente wurden ebenfalls geringer aktiviert, da der thermische Neutronenfluss kleiner war. Zwischen dem thermischen Neutronenfluss und der Wasserstoffkonzentration besteht ein linearer Zusammenhang (siehe Abschnitt 11.6).

Es konnten keine Spuren von Quecksilber oder Blei in dem Erdreich nachgewiesen werden. Entweder sind diese Elemente aufgrund der Bodensanierung in nicht mehr messbaren Mengen vorhanden oder es wurde nicht tief genug gegraben. Als ein kleiner Erfolg, kann der Nachweis von Samarium gesehen werden, das zu den Seltenen Erden gehört. Samarium kommt in der Erdkruste zu  $8 \cdot 10^{-4}$  Gew.-% vor [Yaroshevsky2006]. Es ist in verschiedenen Mineralien, wie z. B. Monazit (enthält bis zu 1 Gew.-% Sm), zu finden. Der Monazit tritt bei der Förderung der Steinkohle zutage. Er wird in der Kohlenwäsche mit den anderen Begleitstoffen von der Kohle getrennt und auf die Abraumhalde gelegt. Die Wirkungsquerschnitte von Seltenen Erden sind im Vergleich zu anderen Elementen sehr groß, z. B. hat Samarium einen Einfangwirkungsquerschnitt für thermische Neutronen von 5621 b. Es lassen sich kleinste Spuren von Samarium nachweisen. In den Ausschnitten der Prompt-Gamma-Spektren auf der Seite 146, sind die Haupt-Gamma-Linien des Isotops  $^{149}\text{Sm}$  bei 334 keV ( $\sigma_{\gamma} = 4790 \text{ b}$ ) und 439 keV ( $\sigma_{\gamma} = 2860 \text{ b}$ ) zu sehen.

**Tabelle 33:** Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Prompt-Gamma-Spektrum der unbehandelten Erdreichprobe.

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]
334	<sup>149</sup> Sm	1373 (163)	46254 (215)	0,63 (7)
352	<sup>56</sup> Fe	2087 (206)	42445 (206)	0,96 (9)
439	<sup>149</sup> Sm	486 (185)	26140 (162)	0,22 (8)
472	<sup>24m</sup> Na	8483 (270)	27849 (167)	3,89 (12)
517	<sup>35</sup> Cl	1047 (136)	19519 (140)	0,48 (6)
661	<sup>137</sup> Cs	4797 (222)	10771 (104)	2,20 (10)
692	<sup>56</sup> Fe	768 (107)	9702 (98)	0,35 (5)
786+788	<sup>35</sup> Cl	5018 (202)	13277 (115)	2,30 (9)
1712	SE- <sup>1</sup> H	1223 (145)	5240 (72)	0,56 (7)
1725	<sup>56</sup> Fe	798 (134)	4448 (67)	0,37 (6)
1779	<sup>28</sup> Al	3421 (175)	4868 (70)	1,57 (8)
1943	<sup>40</sup> Ca	871 (109)	4874 (70)	0,40 (5)
1951	<sup>35</sup> Cl	2443 (109)	4729 (69)	1,12 (5)
1959	<sup>35</sup> Cl	1519 (104)	4093 (64)	0,70 (5)
2093	<sup>28</sup> Si	828 (109)	3365 (58)	0,38 (5)
2223	<sup>1</sup> H	27125 (387)	10216 (101)	12,45 (18)

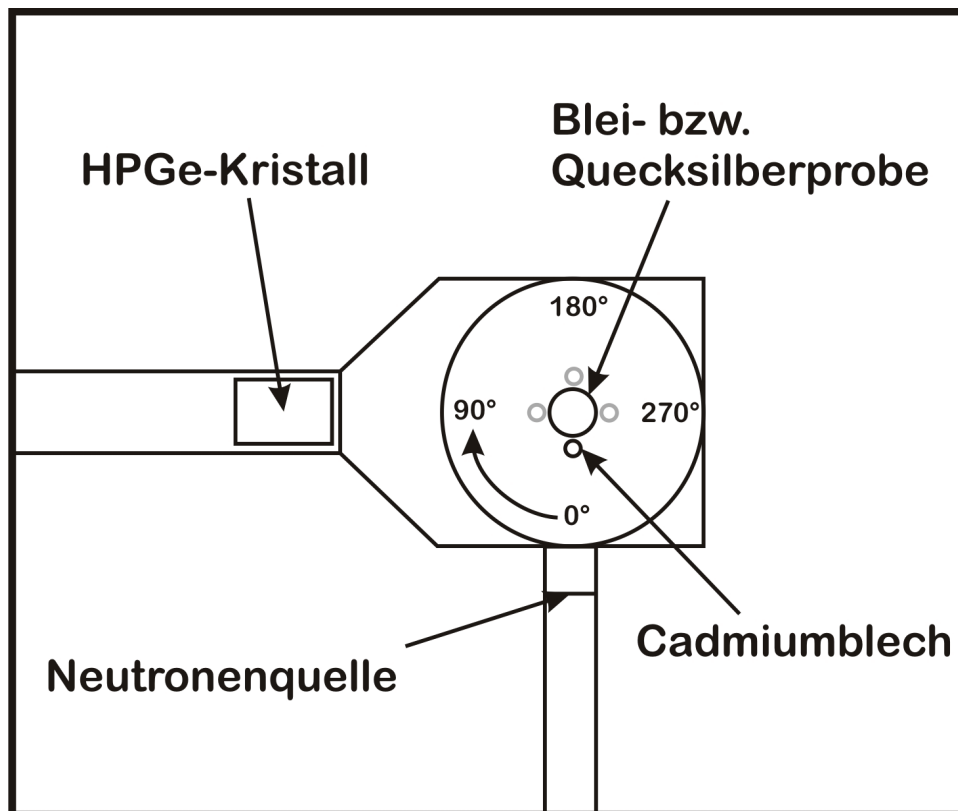
**Tabelle 34:** Analyse einiger ausgewählter Gamma-Linien im Prompt-Gamma-Spektrum der getrockneten Erdreichprobe.

Energie [keV]	Isotop	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]
334	<sup>149</sup> Sm	1255 (184)	39553 (199)	0,58 (8)
352	<sup>56</sup> Fe	2390 (270)	43691 (209)	1,10 (12)
439	<sup>149</sup> Sm	621 (198)	35425 (188)	0,29 (9)
472	<sup>24m</sup> Na	8272 (244)	25699 (160)	3,80 (11)
517	<sup>35</sup> Cl	1452 (118)	17556 (132)	0,67 (5)
661	<sup>137</sup> Cs	4301 (196)	11178 (106)	1,97 (9)
692	<sup>56</sup> Fe	580 (78)	7469 (86)	0,27 (4)
786+788	<sup>35</sup> Cl	4758 (197)	14750 (121)	2,18 (9)
1712	SE- <sup>1</sup> H	722 (108)	3597 (60)	0,33 (5)
1725	<sup>56</sup> Fe	739 (107)	4497 (67)	0,34 (5)
1779	<sup>28</sup> Al	3620 (175)	5542 (74)	1,66 (8)
1943	<sup>40</sup> Ca	218 (100)	4618 (68)	0,10 (5)
1951	<sup>35</sup> Cl	2031 (105)	4098 (64)	0,93 (5)
1959	<sup>35</sup> Cl	1234 (107)	3622 (60)	0,57 (5)
2093	<sup>28</sup> Si	550 (93)	4628 (68)	0,25 (4)
2223	<sup>1</sup> H	16564 (246)	7213 (85)	7,61 (11)

## 10.5. Bestrahlung inhomogener Probenzusammenstellungen

Für die Charakterisierung inhomogener Proben spielen Neutronen- und Photonenabschirmung eine wichtige Rolle. Es wurde untersucht, wie sich die Abschirmeffekte bei der Aktivierung einzelner

Proben bemerkbar machen. Dazu wurden zwei Studien mit Quecksilber (1660 g) und Cadmium (8 g) bzw. Blei (10952 g) und Cadmium (8 g) durchgeführt. Die Proben wurden in der Mitte der Messkammer, auf der Höhe des Detektors positioniert. Das Cadmium-Blech ist von Messung zu Messung im Uhrzeigersinn um den feststehenden, mit Quecksilber gefüllten Behälter bzw. Blei-Stein gewandert. In Abbildung 60 ist der Versuchsablauf schematisch dargestellt. Jede Proben-Konstellation wurde mit einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus über einen Zeitraum von 1200 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 1 ms und einer Pulslänge von  $65 \mu\text{s}$  wurde die Probe 78 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,2 \cdot 10^6$  Pulsen.



**Abbildung 60:** Schematische Darstellung der Charakterisierung inhomogener Probenzusammenstellungen. Das Cadmium-Blech in der Glasflasche wanderte von Messung zu Messung im Uhrzeigersinn um die Blei- bzw. Quecksilber-Probe.

In den Abbildungen 76 und 77 auf den Seiten 147 und 148 sind Ausschnitte der Prompt-Gamma-Spektren in dem Energiebereich von 300 bis 700 keV dargestellt. Von besonderem Interesse sind die Haupt-Gamma-Linien von  $^{113}\text{Cd}$ ,  $^{199}\text{Hg}$  und  $^{207\text{m}}\text{Pb}$  bei 558, 368 und 570 keV, weil sich die Zählraten dieser Linien in Abhängigkeit vom thermischen Neutronenumfeld und der damit verbundenen Aktivierung der Proben, verändern. In den Tabellen 35 und 36 sind die Analysen dieser Gamma-Linien präsentiert. Die Dichten von Quecksilber ( $13,55 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) und Blei ( $11,34 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) sind in etwa gleich groß, aber die Wirkungsquerschnitte für den Neutroneneinfang sind mit 384 b (Hg) und 0,154 b (Pb) sehr verschieden. Der Behälter mit dem Quecksilber hatte einen Durchmesser von 9 cm und der Blei-Stein einen von 10 cm. Das Produkt aus Dichte und Durchmesser ist in beiden Fällen



etwa gleich groß, für Quecksilber ergibt sich  $121,95 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}$  und für Blei  $113,4 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Das Abschirmverhalten gegenüber der Gamma-Strahlung ist vergleichbar. Für den Unterschied in den Zählraten sollte vorrangig die Aktivierung des Cadmium-Blechs verantwortlich sein. Leider lassen die Ergebnisse mit der Quecksilber-Probe darauf schließen, dass der PE-Behälter nicht vollständig gefüllt gewesen ist. Die Zählrate bei der Cadmium-Position von  $270^\circ$  ist viel zu hoch. Sehr wahrscheinlich lag ein Teil des Cadmium-Blechs über dem Quecksilberspiegel in dem PE-Behälter. Bei der Messung mit der Blei-Probe und dem Cadmium-Blech in der  $180^\circ$  Position sind die Zählraten insgesamt höher. Vermutlich lag die Neutronenquellstärke in diesem Fall unerklärlicherweise über  $8\cdot 10^6 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$ . Bei der Berechnung der Nachweisgrenzen wurden oben die hergeleiteten Korrekturfaktoren für die Absorption der Neutronen und Photonen in den Proben berücksichtigt.

**Tabelle 35:** Analyse der  $^{113}\text{Cd}$ -Gamma-Linie bei 558 keV und der  $^{199}\text{Hg}$ -Gamma-Linie bei 368 keV.

Cadmium- Position	Netto-Peakfläche		Untergrundfläche		NWG	
	$^{113}\text{Cd}$	$^{199}\text{Hg}$	$^{113}\text{Cd}$	$^{199}\text{Hg}$	[mg] $^{113}\text{Cd}$	[g] $^{199}\text{Hg}$
$0^\circ$	5864 (229)	13396 (344)	23388 (153)	52695 (230)	84	3,6
$90^\circ$	6403 (245)	11595 (352)	27015 (164)	56436 (238)	83	4,3
$180^\circ$	4577 (237)	14436 (354)	25863 (161)	55704 (236)	113	3,5
$270^\circ$	3206 (235)	14322 (359)	26217 (162)	57627 (240)	162 <sup>a</sup>	3,6
Zentrum	7375 (235)	-	23967 (155)	-	68	-

<sup>a</sup> Der hohe Wert der NWG zeigt, dass der Quecksilber-Behälter nur halb gefüllt war.

$$\text{NWG} = 3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{element}}}$$

**Tabelle 36:** Analyse der  $^{113}\text{Cd}$ -Gamma-Linie bei 558 keV und der  $^{207\text{m}}\text{Pb}$ -Gamma-Linie bei 570 keV.

Cadmium- Position	Netto-Peakfläche		Untergrundfläche		NWG	
	$^{113}\text{Cd}$	$^{207\text{m}}\text{Pb}$	$^{113}\text{Cd}$	$^{207\text{m}}\text{Pb}$	[mg] $^{113}\text{Cd}$	[g] $^{207\text{m}}\text{Pb}$
$0^\circ$	6353 (229)	855 (124)	23241 (152)	14564 (121)	77	464
$90^\circ$	8931 (245)	594 (130)	25776 (161)	16456 (128)	58	710
$180^\circ$	7658 (267)	986 (145)	31902 (179)	20282 (142)	75	475
$270^\circ$	-	671 (124)	22554 (150)	14928 (122)	-	598
Zentrum	7375 (235)	-	23967 (155)	-	68	-

$$\text{NWG} = 3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{element}}}$$

## 10.6. Untersuchung einer Cadmium-Probe in einem betonierten Stahlfass

In Abschnitt 9.2 wird beschrieben, wie ein 50-l-Fass für die Untersuchung inhomogener Betonproben präpariert wurde. In dem variablen Hohlraum im Beton wurde ein 42,26 g schweres Cadmium-Blech positioniert (siehe Abbildung 58). Für eine Messkampagne wurde das Fass von Messung zu Messung im Uhrzeigersinn um  $90^\circ$  gedreht. Die Probe wurde bei jeder Messung mit einer Quellstärke von  $8\cdot 10^6 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$  im Pulsmodus über Zeiträume von 1475 bis 1479 s untersucht. Die Messzeiten lagen, unabhängig von der Totzeit des Spektrometers, immer bei 1000 s. Bei einer Repetitionszeit von 2 ms und einer Pulslänge von 180  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 133 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $7,4\cdot 10^5$  Pulsen. In Abbildung 78 auf Seite 149 sind die Prompt-Gamma-Spektren im Energiebereich von 450 bis 670 keV dargestellt. Die Analyse der  $^{113}\text{Cd}$ -Gamma-Linie bei 558 keV ist

in Tabelle 37 präsentiert. Da die Cadmium-Probe in diesem Fall größer ist, als in den oben beschriebenen Experimenten, muss der Korrekturfaktor für die Neutronenabsorption neu berechnet werden. Bei einer Proben-Abmessung von 4 x 4 cm und einer Dicke von 3 mm, wurden etwa 8,4 % der Probe mit thermischen Neutronen aktiviert.

**Tabelle 37:** Analyse der  $^{113}\text{Cd}$ -Gamma-Linie bei 558 keV.

Cadmium-Position	Netto-Peakfläche	Untergrundfläche	Zählrate [s <sup>-1</sup> ]	NWG [mg]
0°	1613 (172)	16851 (130)	1,61 (17)	857
90°	11300 (259)	27788 (167)	11,30 (26)	157
180°	1789 (169)	16136 (127)	1,79 (17)	756
270°	363 (162)	15579 (125)	0,36 (16)	3662
Zentrum	1504 (167)	15880 (126)	1,50 (17)	892

$$\text{NWG} = 3 \cdot \sqrt{\text{Untergrundfläche} / \text{Netto-Peakfläche} \cdot m_{\text{Element}}}$$

Anhand der Ergebnisse für die Nachweisgrenzen in dem betonierten Stahlfass können die Nachweisgrenzen für ein nicht abgeschirmtes Cadmiumblech bestimmt werden. Dafür ist die Berechnung der Abschwächung der Gamma-Strahlung bei 558 keV notwendig. In Tabelle 38 sind die Massenschwächungskoeffizienten für die Gamma-Strahlung mit einer Energie von 558 keV dargestellt. Das Cadmium-Blech im Zentrum des Probenfasses befindet sich 35 cm von der Frontseite des Detektors entfernt. Die Gamma-Strahlung muss eine bis zu 20 cm dicke Betonschicht, 2 mm Stahl, 5 mm  $^6\text{LiF}$  und 1 mm Aluminium durchqueren, bevor sie im Detektor registriert werden kann. Die Aluminiumdicke setzt sich aus der Dicke des Aluminiumträgers der  $^6\text{Li}$ -Abschirmung und der Dicke der Schutzkappe des Detektors zusammen.

**Tabelle 38:** Massenschwächungskoeffizienten verschiedener Materialien bei 558 keV [Krieger, S. 558ff].

Material	Dichte [g·cm <sup>-3</sup> ]	Massenschwächungskoeffizient [cm <sup>-1</sup> ]	Halbwertsschichtdicke [cm]
Beton	1,60	0,139	5,0
Stahl	7,86	0,630	1,1
Aluminium	2,70	0,225	3,1
$^6\text{LiF}$	1,38	0,112	6,2

Nach dem Abschwächungsgesetz wird die Intensität der Gamma-Strahlung bei der Durchquerung der verschiedenen Materialien einschließlich der 10 cm Beton auf 20,3 % abgeschwächt. Bei 90° durchdringt die Gamma-Strahlung nur das Stahlfass, das Aluminiumblech und die  $^6\text{LiF}$ -Abschirmung, dadurch wird die Intensität auf 81,5 % abgeschwächt. Im ungünstigsten Fall bei 270° muss die Gamma-Strahlung zusätzlich 20 cm Beton durchdringen, wodurch die Intensität auf 5,1 % abgeschwächt wird. Diese Angaben werden für die Berechnung der Nachweisgrenzen ohne Abschirmung benötigt. In Tabelle 39 sind die Ergebnisse für die verschiedenen Cadmium-Positionen aufgelistet.

**Tabelle 39:** Nachweisgrenzen für Cadmium, ohne Abschirmung, in verschiedenen Entfernungen zum Detektor. Die unterschiedliche Detektor-Effizienz wurde nach dem Abstandsgesetz berücksichtigt.

Cadmium-Position	0°	90°	180°	270°	Zentrum
NWG [mg]	218	64	193	283	181

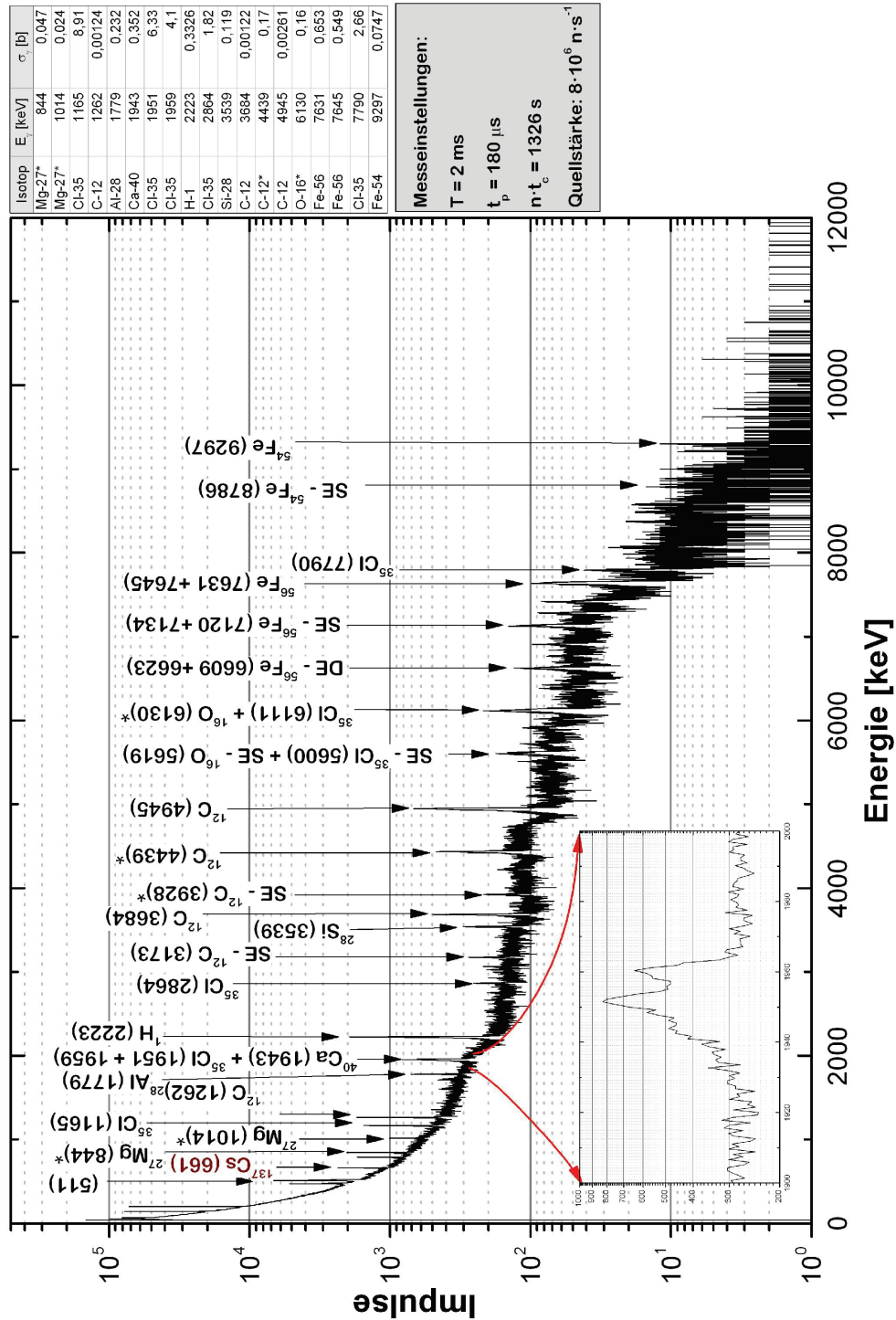


Abbildung 61: Ausschnitt aus dem Prompt-Gamma-Spektrum der leeren Messkammer. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen.

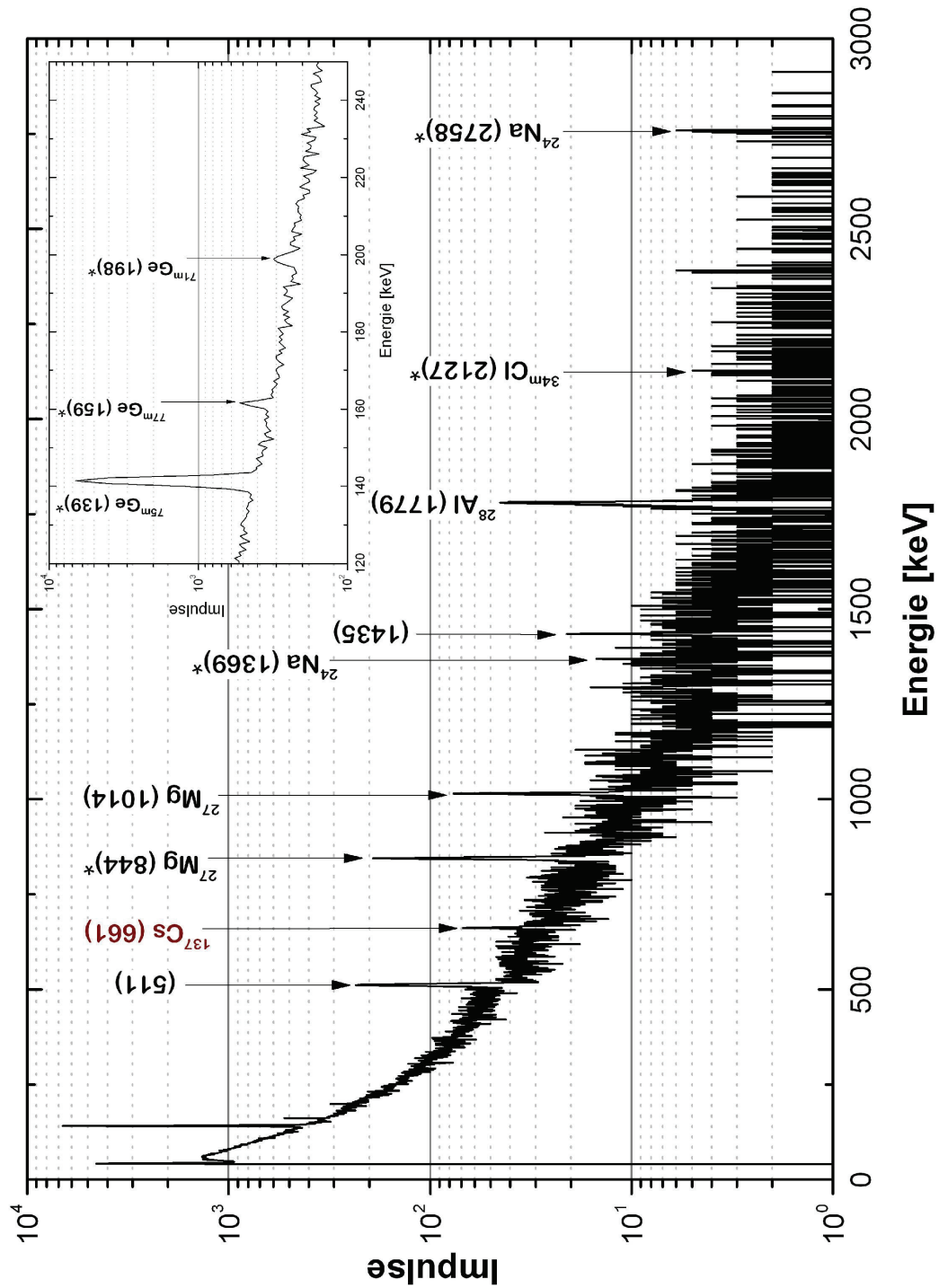


Abbildung 62: Verzögertes-Gamma-Spektrum der leeren Messkammer. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen.

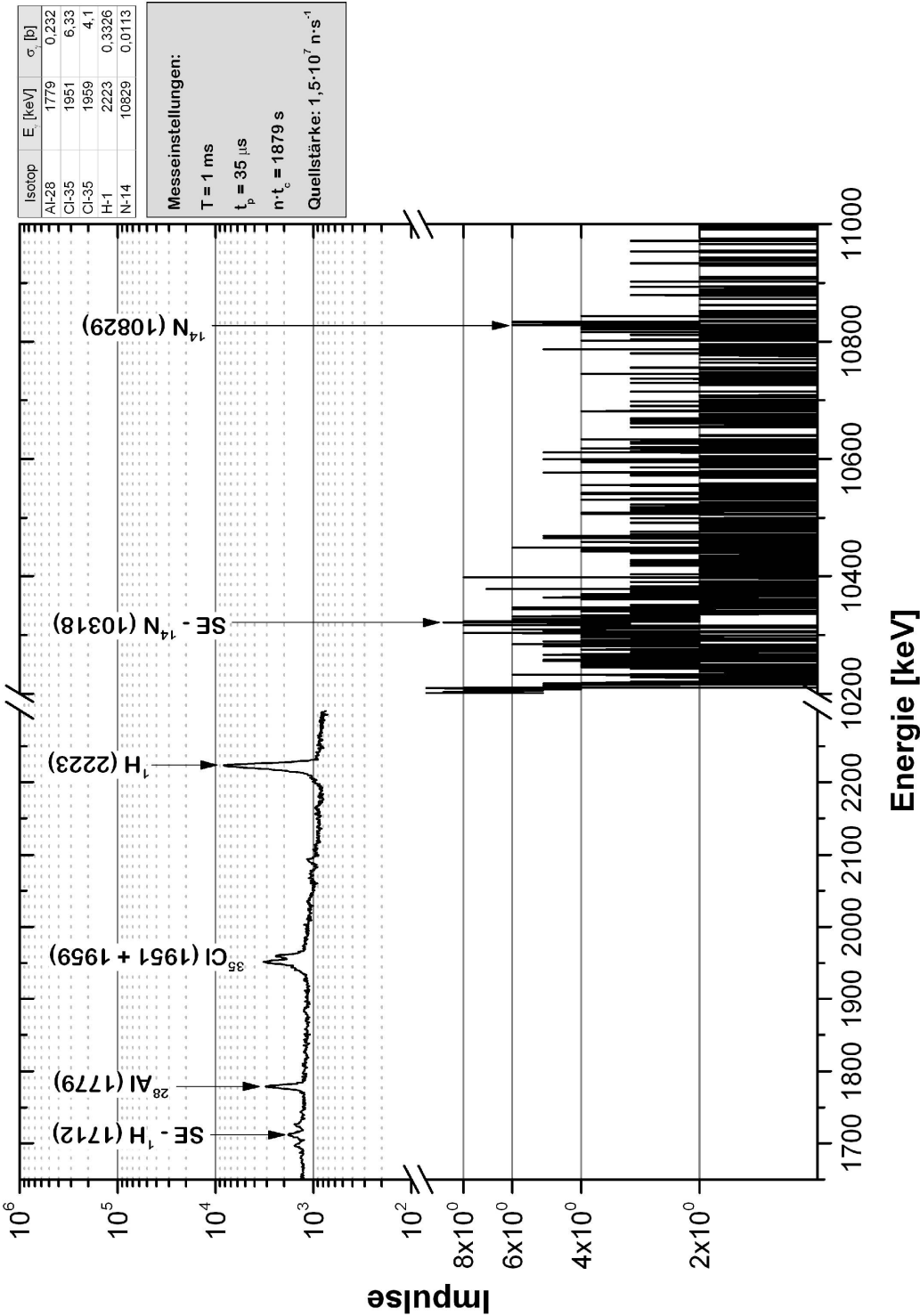


Abbildung 63: Ausschnitt aus dem Prompt-Gamma-Spektrum der Harnstoff-Probe.

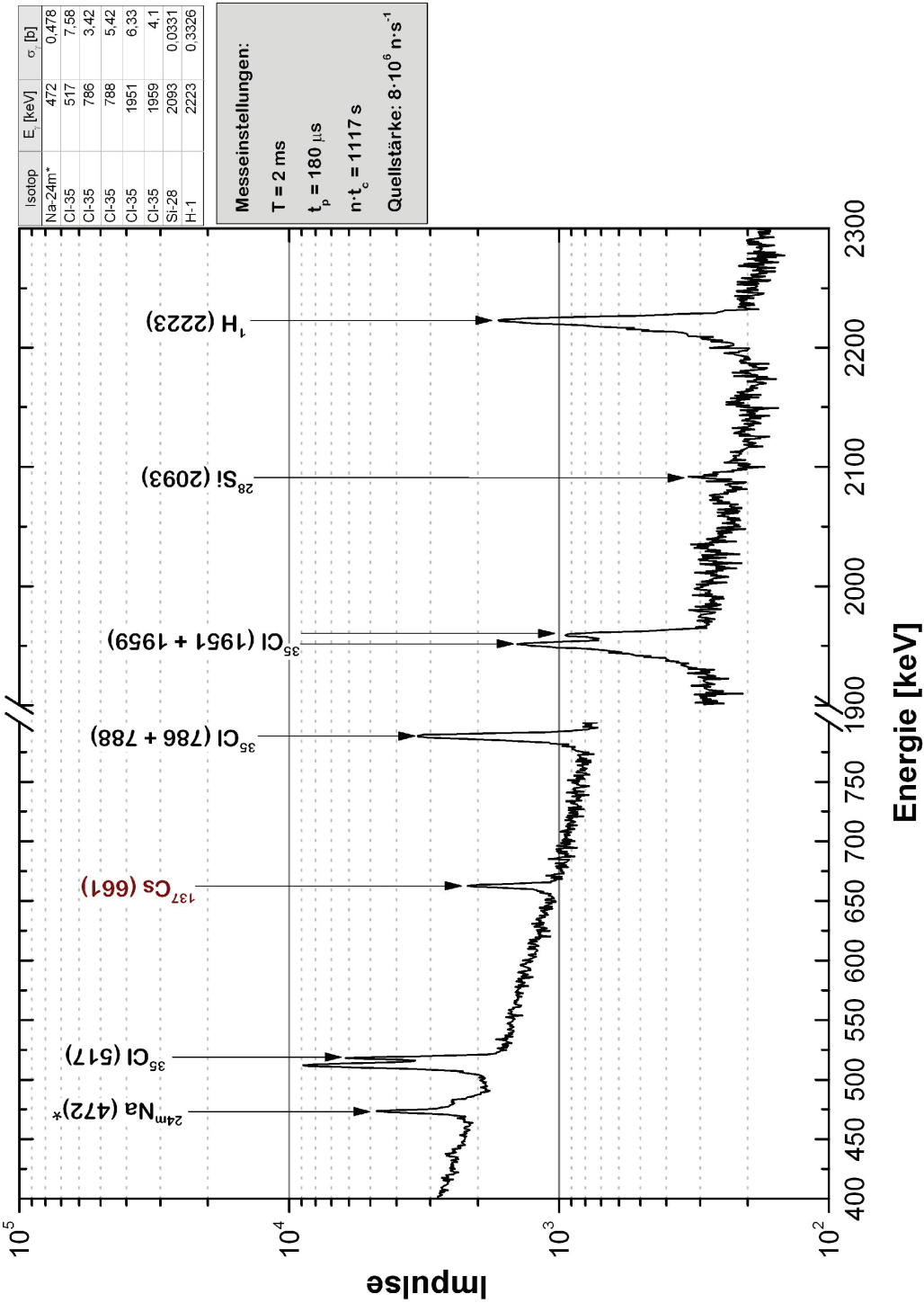


Abbildung 64: Ausschnitt aus dem Prompt-Gamma-Spektrum der Natriumchlorid-Probe. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen.

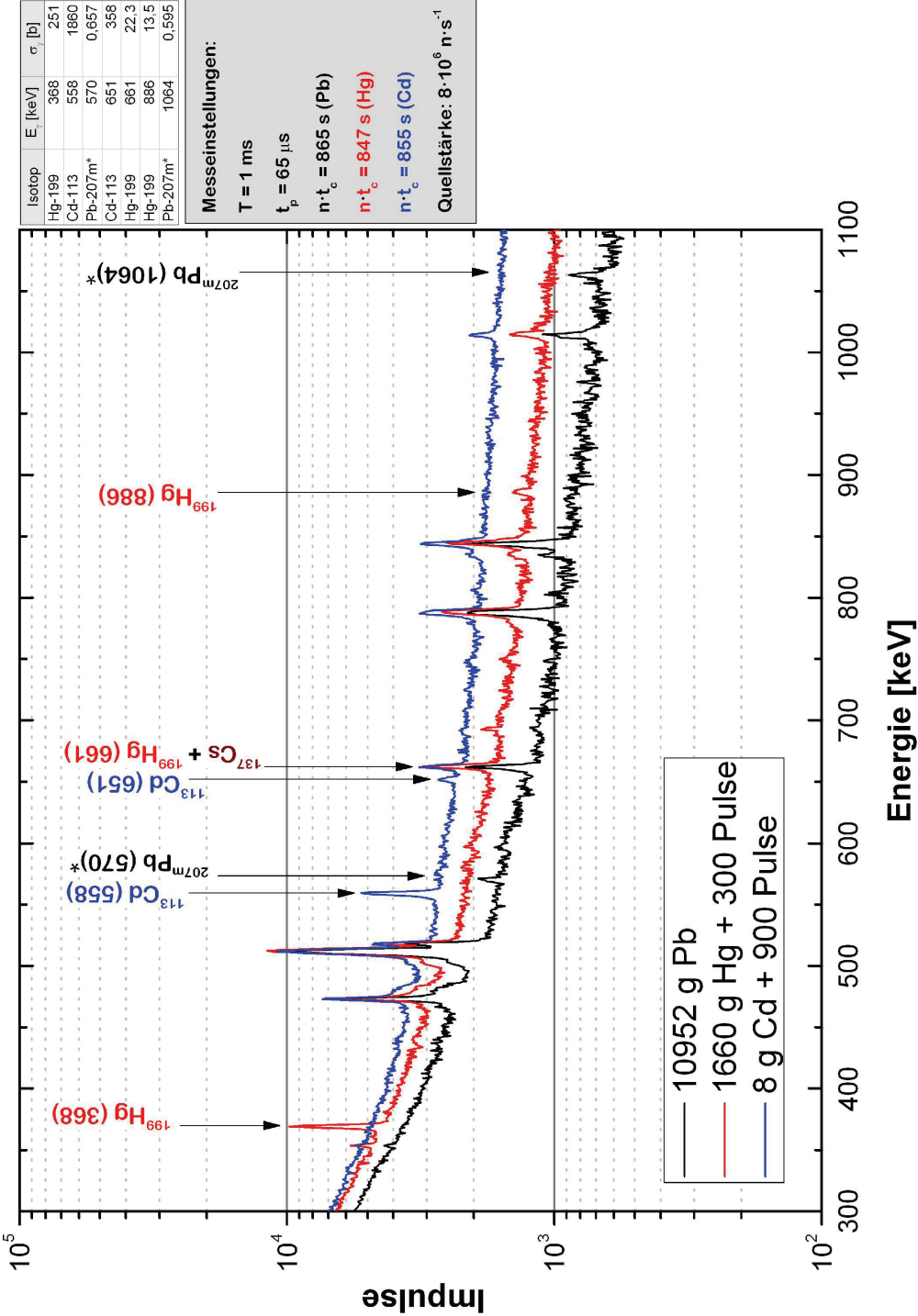


Abbildung 65: Ausschnitt aus den Prompt-Gamma-Spektren der Blei-, Quecksilber- und Cadmium-Probe. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen.



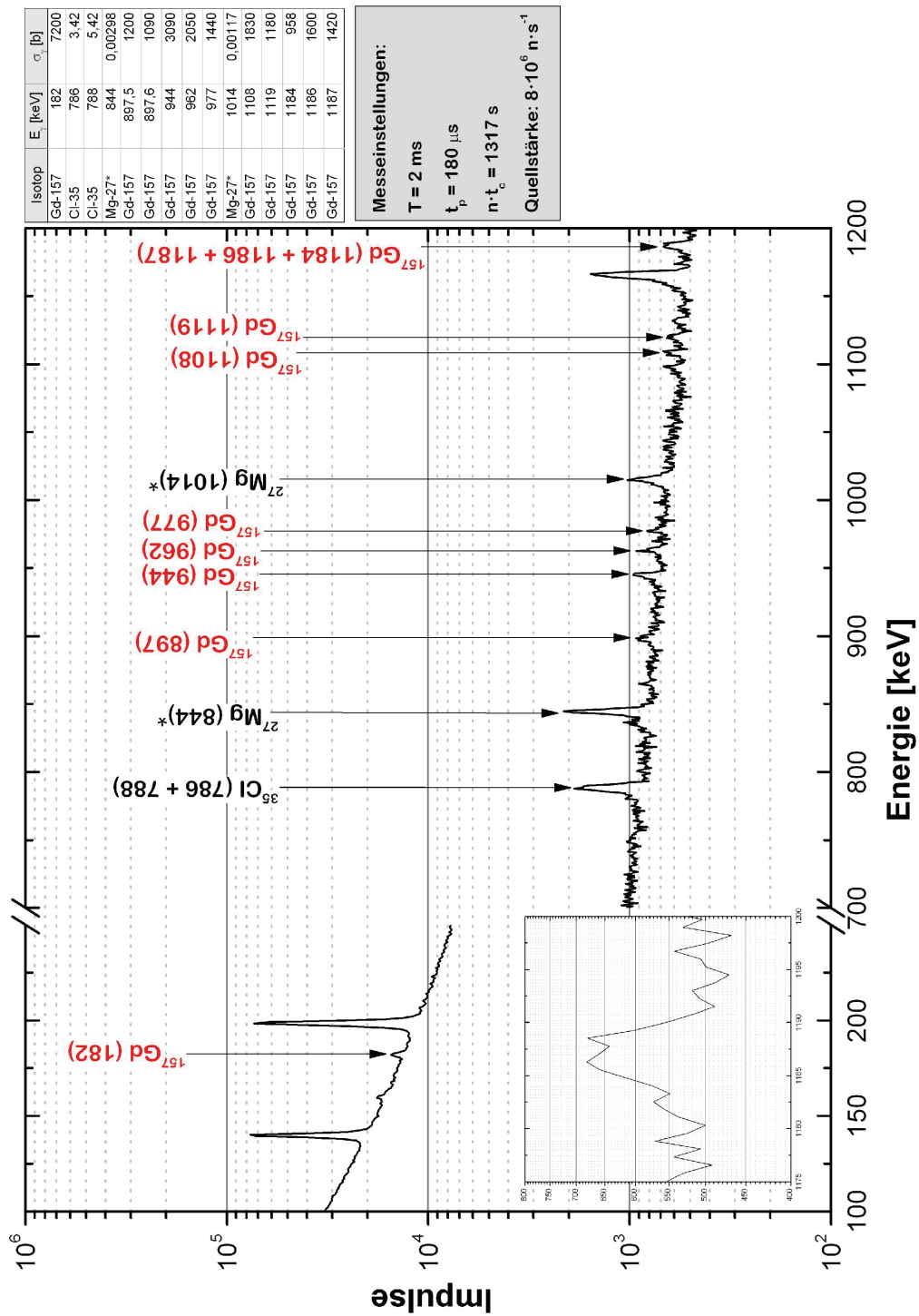


Abbildung 66: Ausschnitt aus dem Prompt-Gamma-Spektrum der Gadolinium-Probe. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen.



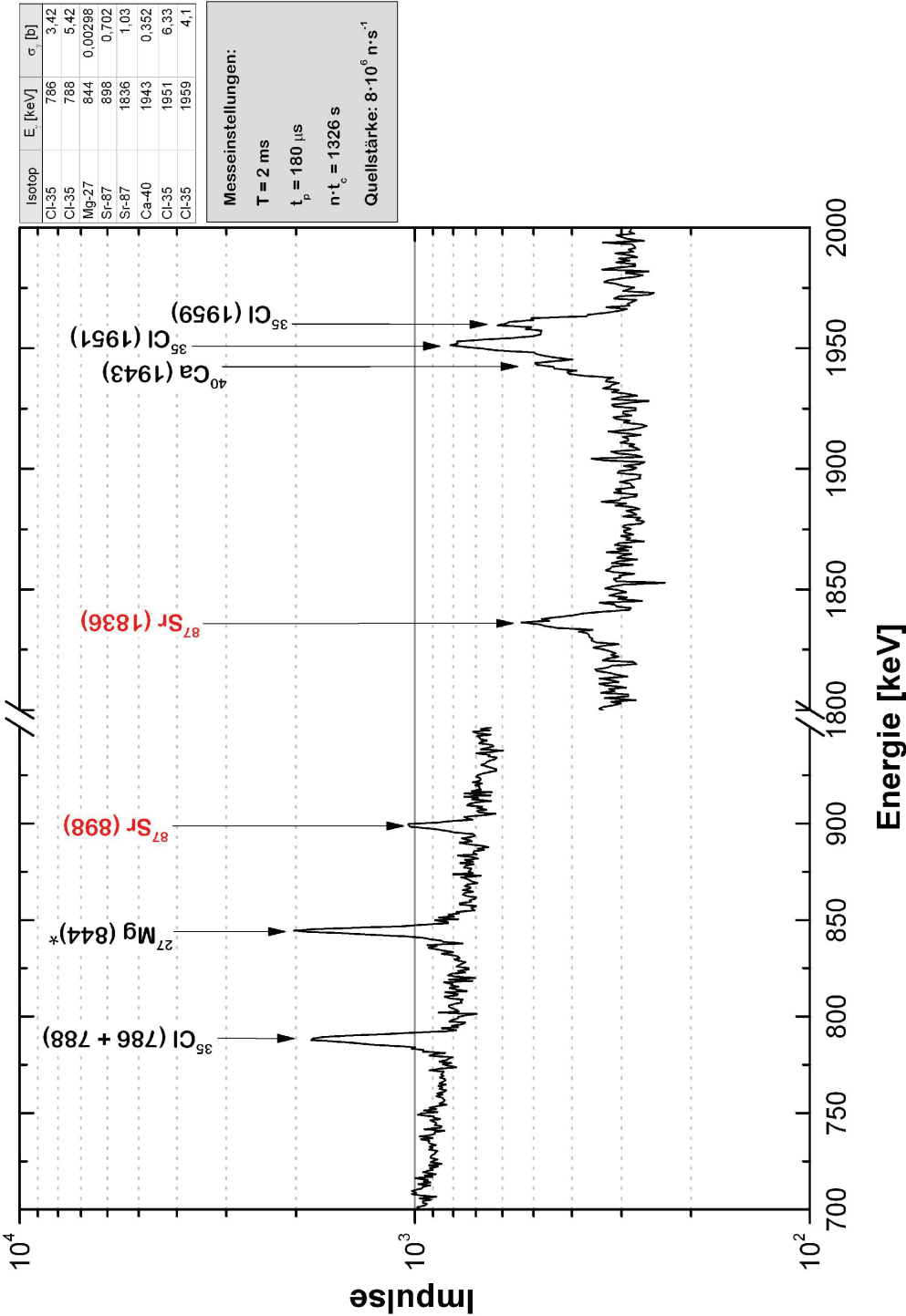


Abbildung 67: Ausschnitt aus dem Prompt-Gamma-Spektrum der Strontium-Probe. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen.

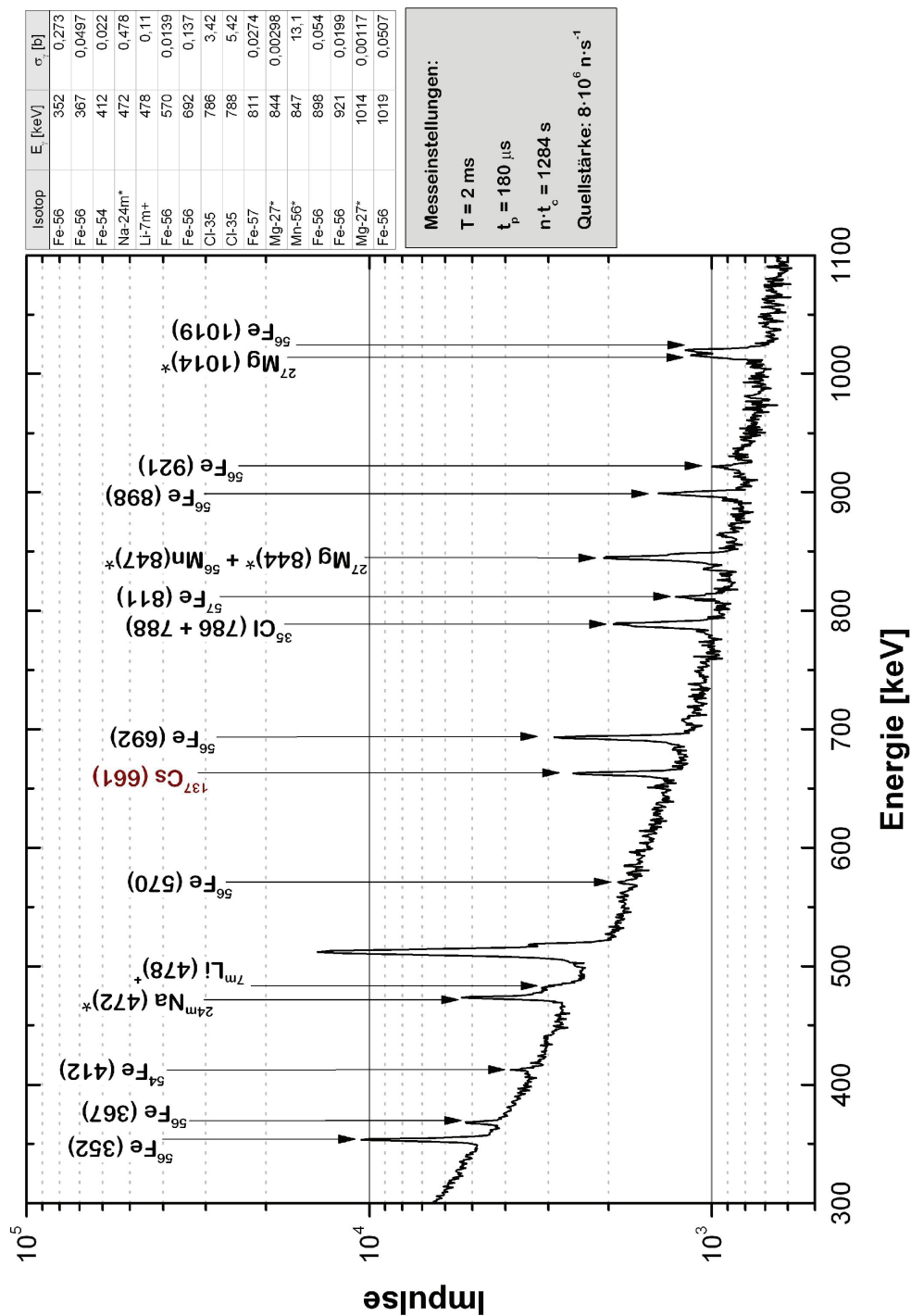


Abbildung 68: Ausschnitt aus dem Prompt-Gamma-Spektrum des leeren 25-l-Stahlfasses. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen und die Gamma-Linie bei 478 keV aus der  $^7\text{Li}(\alpha, \alpha')^7\text{mLi}$ -Reaktion.

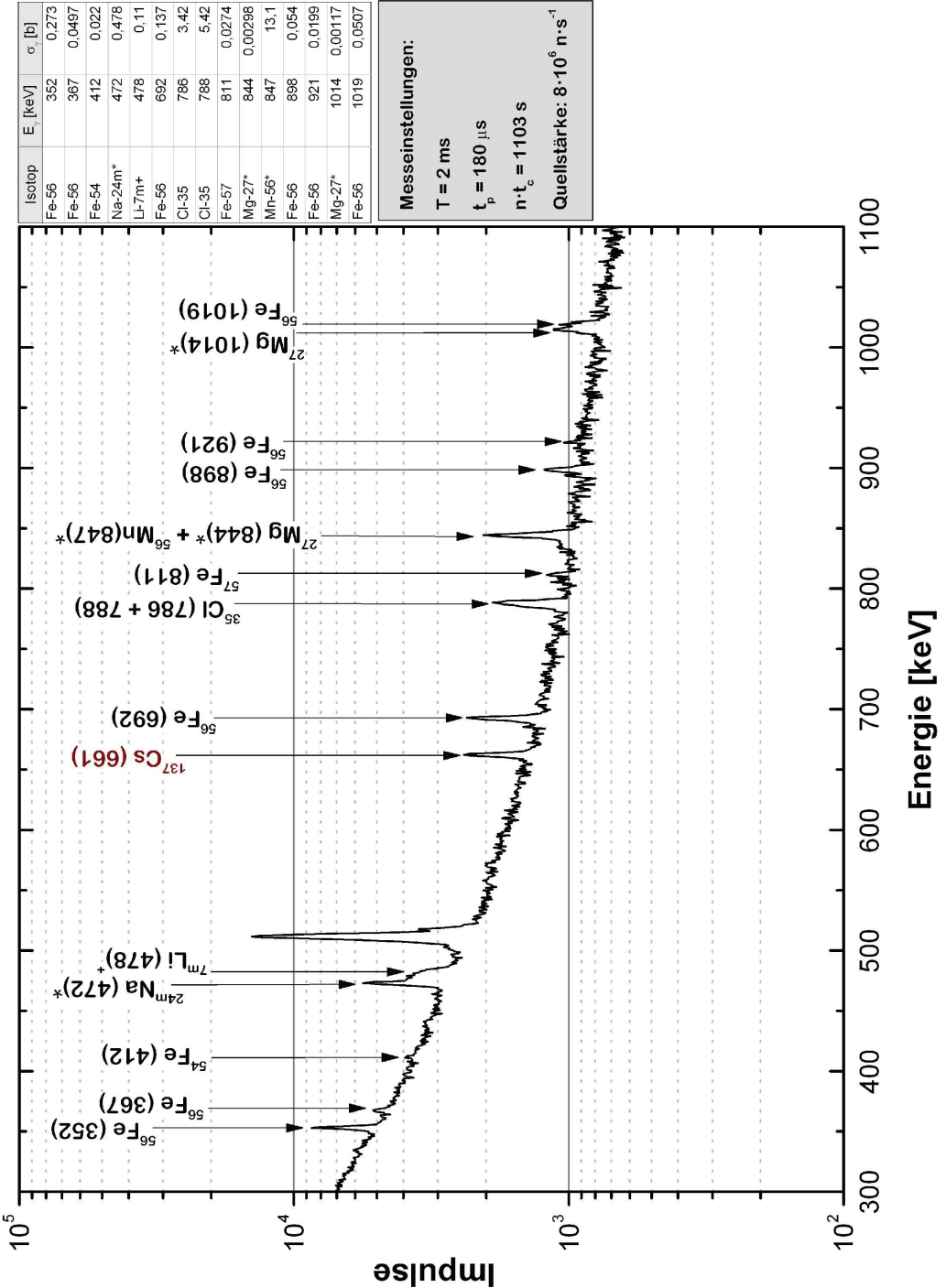


Abbildung 69: Ausschnitt aus dem Prompt-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 1 im niederenergetischen Bereich. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen und die Gamma-Linie bei 478 keV aus der  ${}^7\text{Li}(\alpha, \alpha'){}^m\text{Li}$ -Reaktion.

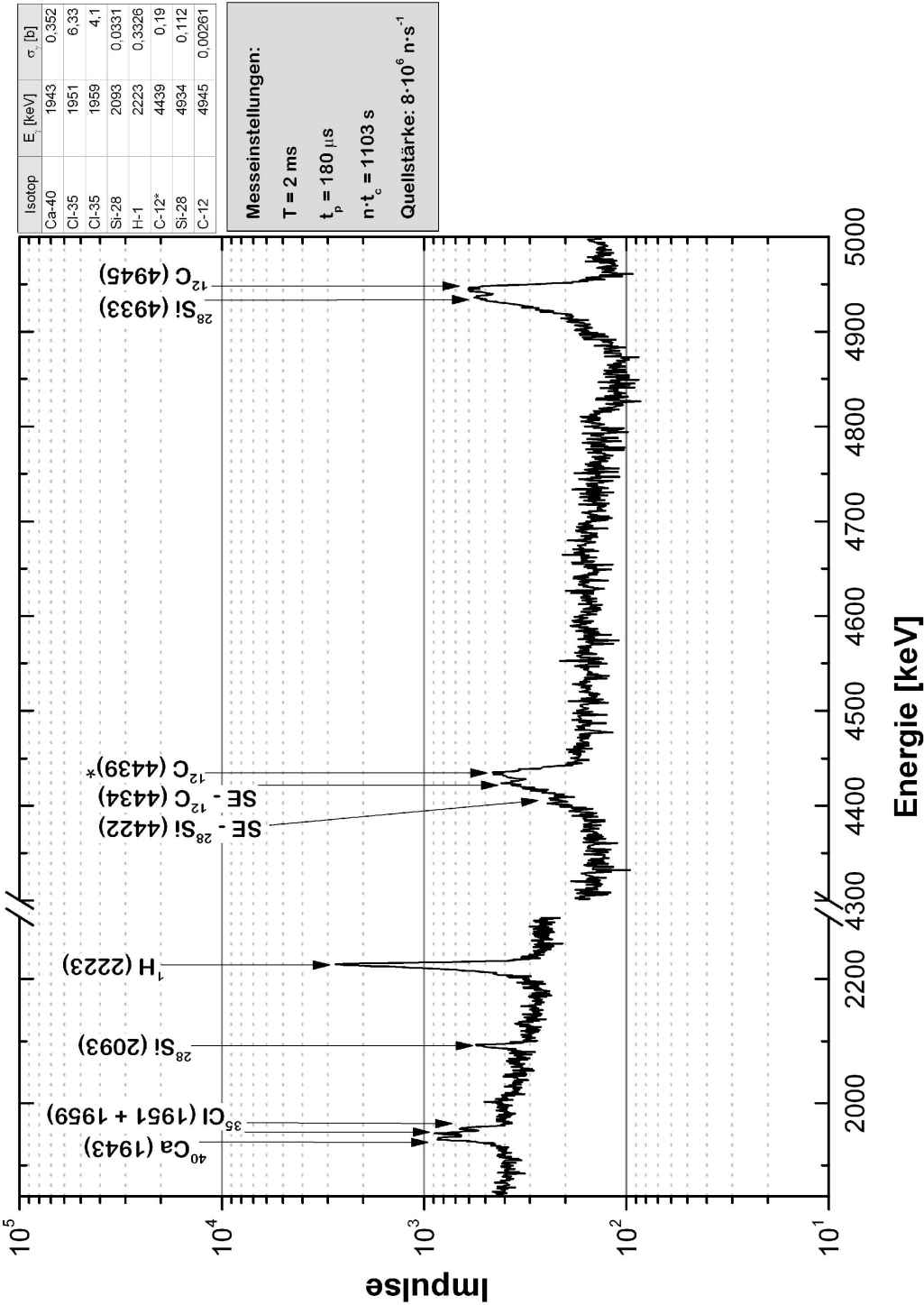


Abbildung 70: Prompt-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 1 im hochenergetischen Bereich. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen.

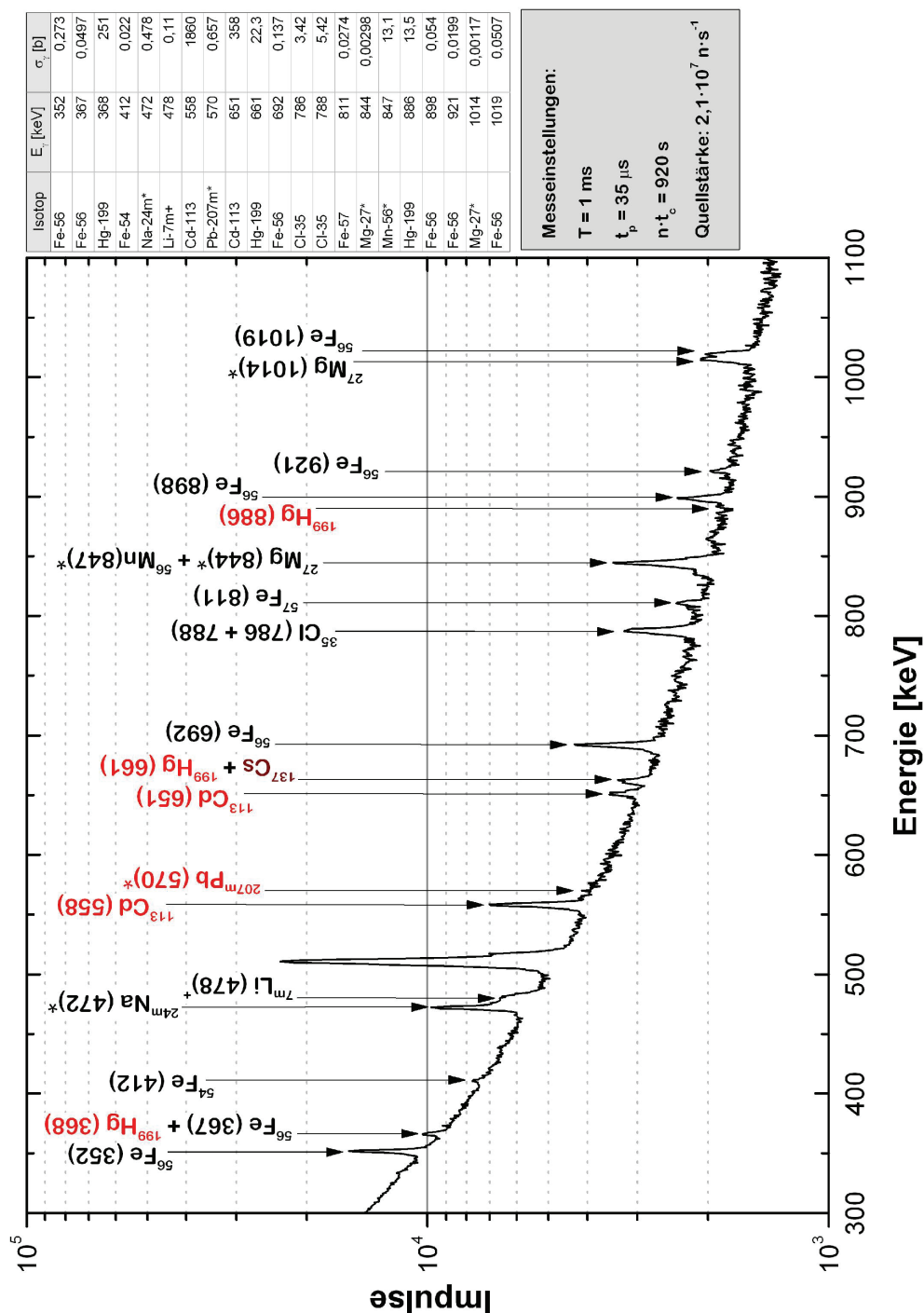
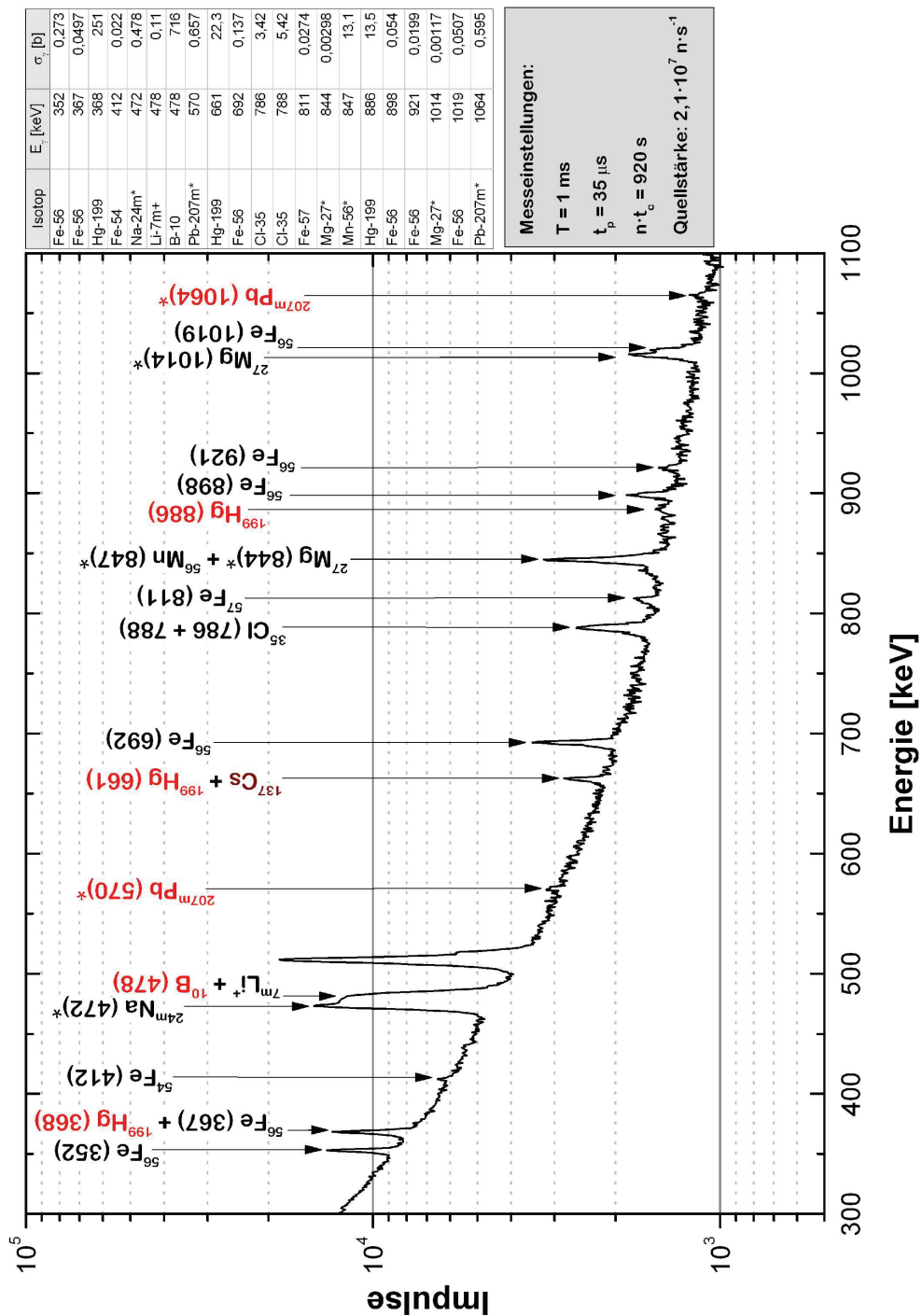


Abbildung 71: Prompt-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 2. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen und die Gamma-Linie bei 478 keV aus der  ${}^7\text{Li}(\alpha, \alpha'){}^7\text{mLi}$ -Reaktion.



**Abbildung 72:** Prompt-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 3. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen und die Gamma-Linie bei 478 keV aus der  ${}^7\text{Li}(\alpha, \alpha'){}^m\text{Li}$ -Reaktion.

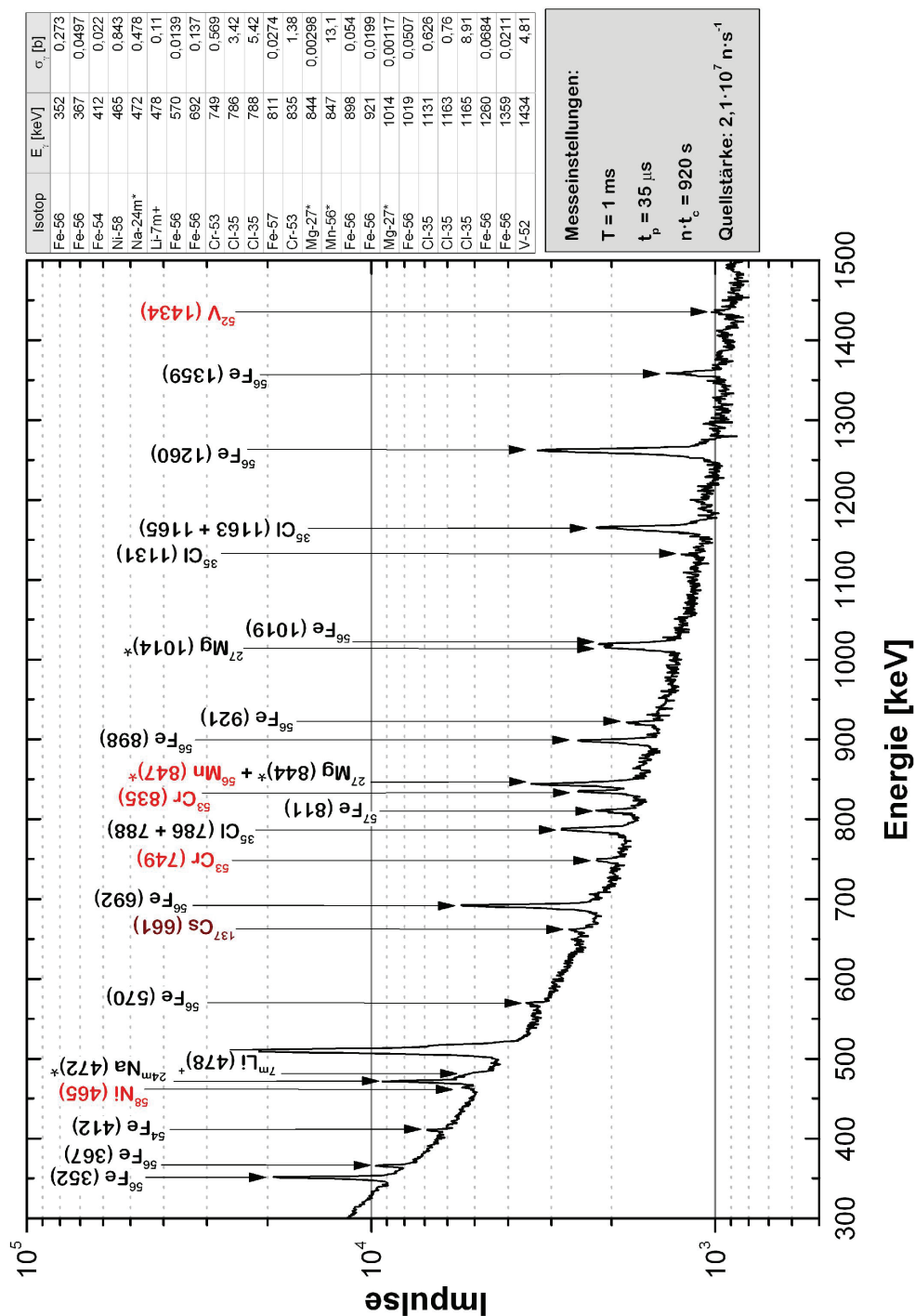


Abbildung 73: Prompt-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 4. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen und die Gamma-Linie bei 478 keV aus der  ${}^7\text{Li}(\alpha, \alpha'){}^m\text{Li}$ -Reaktion.



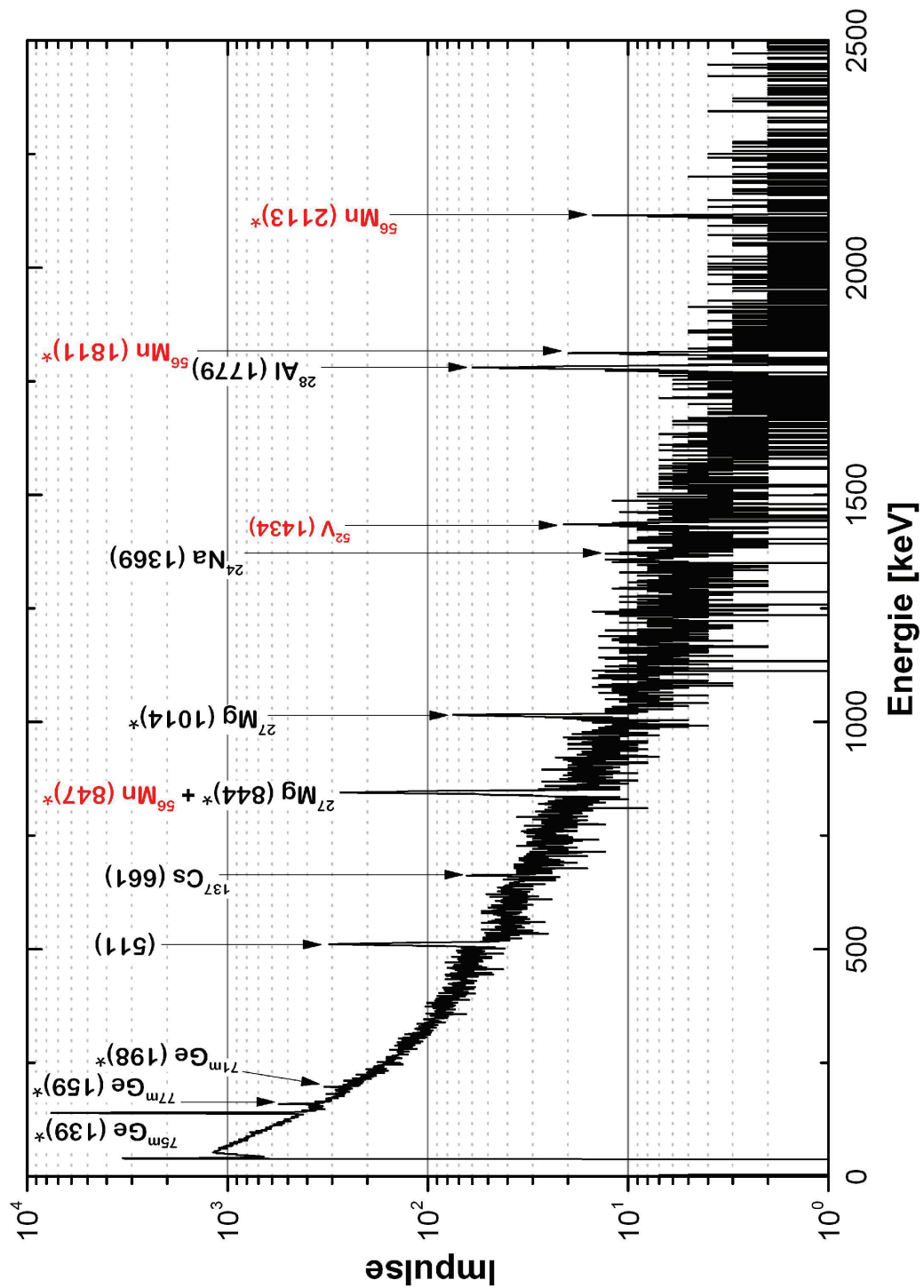
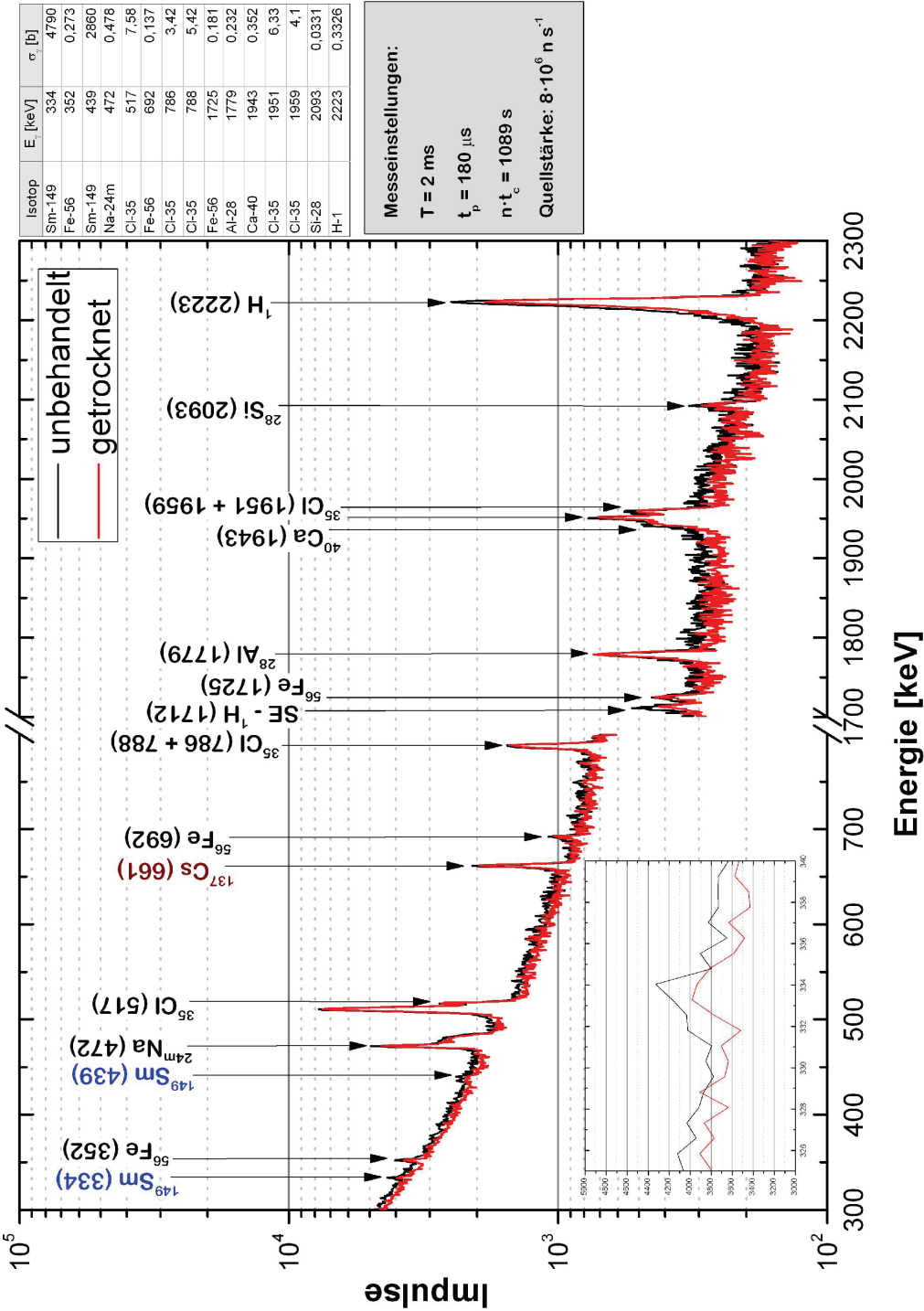
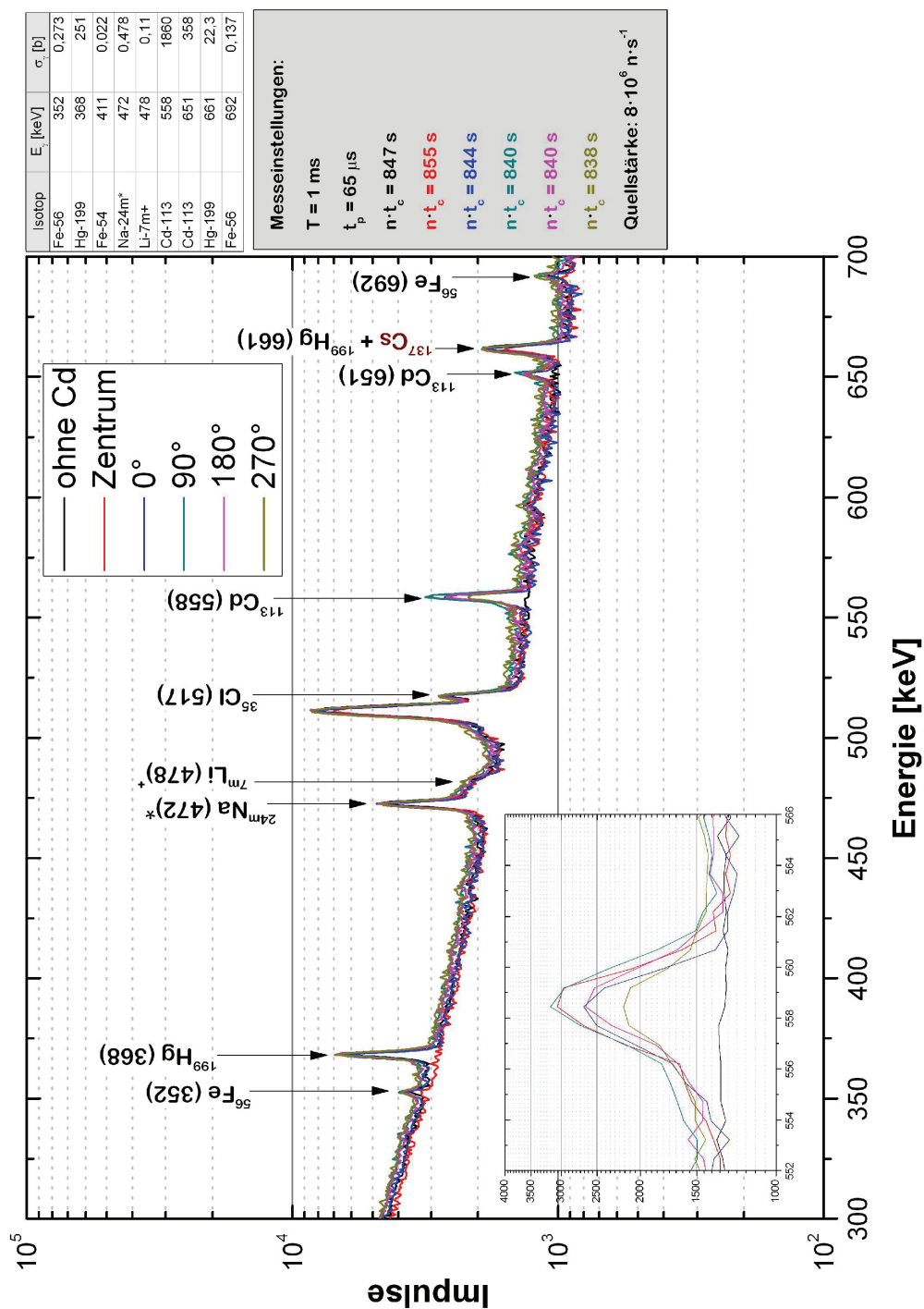


Abbildung 74: Verzögertes-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 4. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen.







**Abbildung 76:** Prompt-Gamma-Spektren der Quecksilber- und Cadmium-Probe. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen und die Gamma-Linie bei 478 keV aus der  ${}^7\text{Li}(\alpha, \alpha'){}^7\text{mLi}$ -Reaktion.

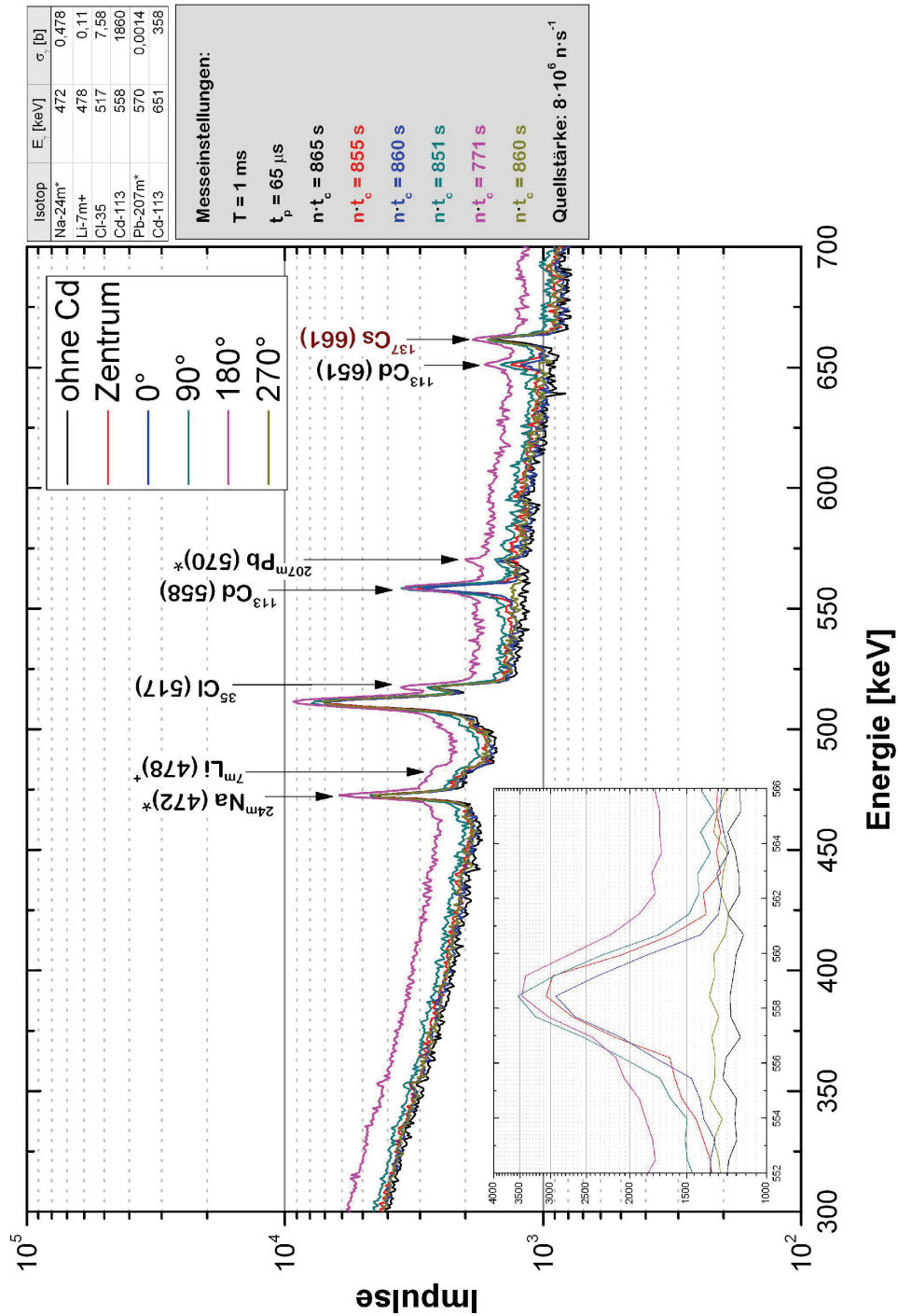
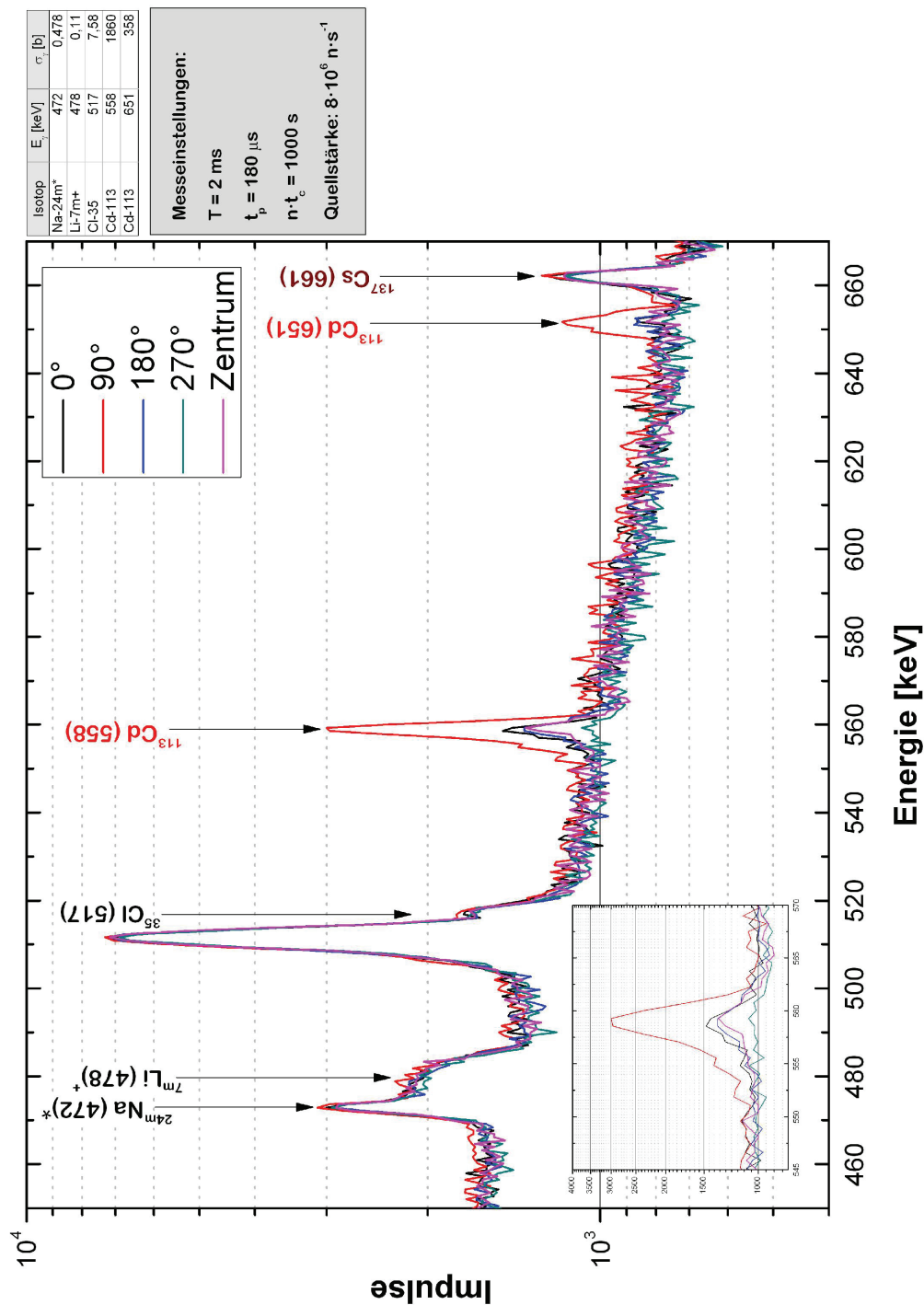


Abbildung 77: Prompt-Gamma-Spektren der Blei- und Cadmium-Probe. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen und die Gamma-Linie bei 478 keV aus der  ${}^7\text{Li}(\alpha, \alpha'){}^7\text{mLi}$ -Reaktion.



**Abbildung 78:** Prompt-Gamma-Spektren der Cadmium-Probe im 50-l-Betonfass. Die mit \* gekennzeichneten Gamma-Linien stammen aus Reaktionen mit schnellen Neutronen und die Gamma-Linie bei 478 keV aus der  ${}^7\text{Li}(\alpha, \alpha'){}^7\text{mLi}$ -Reaktion



# Kapitel 11

## Bestimmung der Neutronenflüsse

### Zusammenfassung

Für die Charakterisierung der verschiedenen Probenfässer ist eine genaue Kenntnis über das Neutronenspektrum und die Größenordnung der Neutronenflüsse notwendig. Da das Spektrum der Neutronen in der Messkammer vom kalten bis in den hochenergetischen Energiebereich reicht, wurden die jeweiligen Neutronenflüsse sowohl experimentell, als auch mit MCNP Simulationen bestimmt. Einen entscheidenden Einfluss auf den thermischen Neutronenfluss hat die Probenzusammensetzung und die damit verbundenen Moderations- bzw. Absorptionseigenschaften der Probe. Es wurden Simulationsstudien durchgeführt, um die Abhängigkeit der Probenaktivierung von der Wasserstoff- und Cadmiumkonzentration zu untersuchen.

### 11.1. MCNP-Studie des Neutronenspektrums

Anhand des MCNP-Modells für das PGNAA-Prototypsystem wurde das Neutronenspektrum in der leeren Graphitkammer berechnet. Es erstreckt sich über 9 Größenordnungen, in einem Energiebereich von unter 10 meV bis 14,1 MeV (siehe Abbildung 79). Die Ergebnisse der Simulation sind, wie bei MCNP üblich, auf ein Quellneutron normiert.

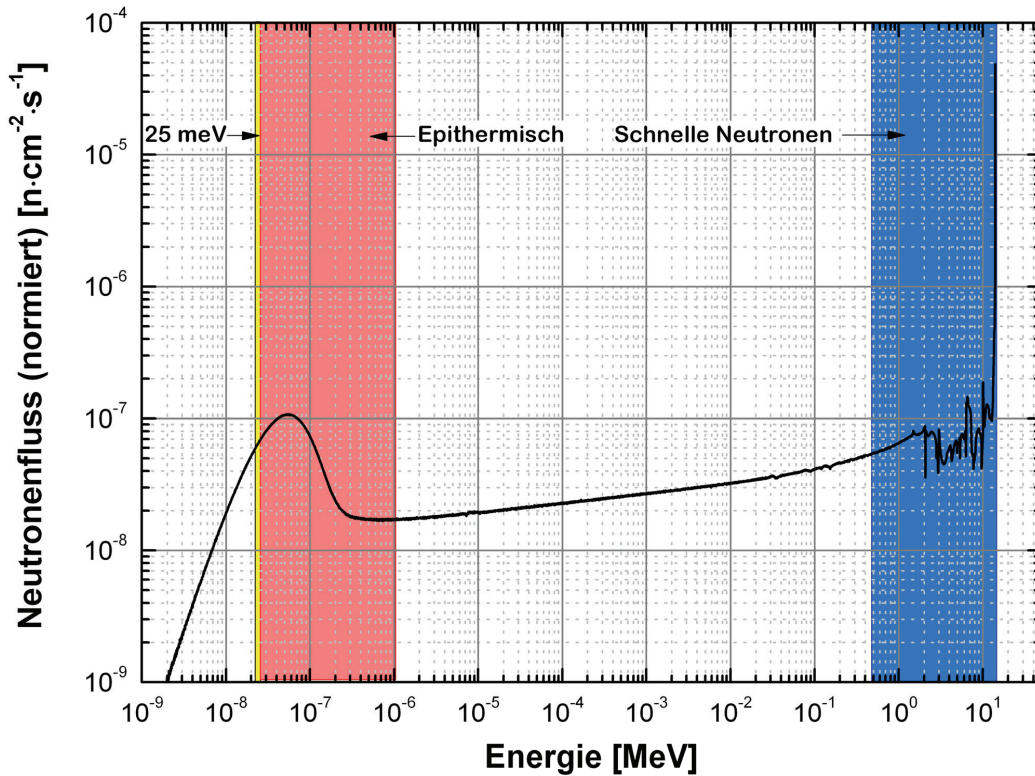


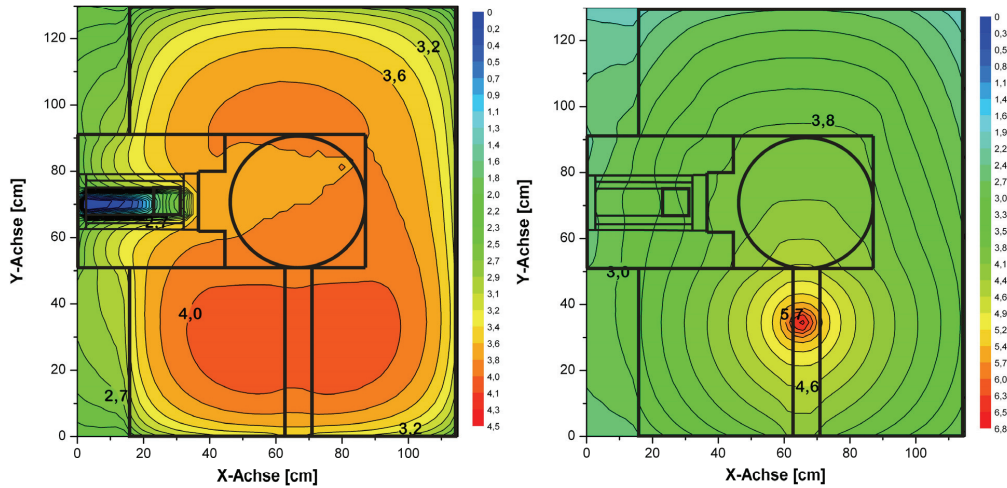
Abbildung 79: Mit MCNP berechnetes Neutronenspektrum in der leeren Graphitkammer.

Das Integral über den kalten und thermischen Energiebereich ergibt einen normierten Neutronenfluss von  $3,02 \cdot 10^{-7} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , der integrierte epithermische Neutronenfluss liegt bei  $8,96 \cdot 10^{-5} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , der integrierte resonante Neutronenfluss im Energiebereich zwischen 1 eV und 1 keV hat einen Wert von  $5,39 \cdot 10^{-5} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , der integrierte langsame Neutronenfluss hat einen Wert von  $8,32 \cdot 10^{-5} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  und der integrierte schnelle Neutronenfluss liegt bei  $1,45 \cdot 10^{-4} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Das Neutronenspektrum in der leeren Graphitkammer ist vergleichbar mit dem Neutronenspektrum innerhalb des mit Beton gefüllten Stahlfasses (siehe Abbildung 12 in Kapitel 5). Der Neutronenfluss im kalten, thermischen und epithermischen Energiebereich stimmt in beiden Fällen, bis auf eine Abweichung von 0,02 %, überein. Im Energiebereich zwischen 500 keV und 14,1 MeV ist der schnelle Neutronenfluss in der leeren Messkammer um 21 % höher.

Die Homogenität des thermischen Neutronenflusses in der leeren Graphitkammer ist in Abbildung 80 dargestellt. Die Konturplots zeigen sowohl den thermischen als auch den schnellen Neutronenfluss, die Werte wurden für eine Quellstärke von  $1 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  berechnet. Der schnelle Neutronenfluss weist in

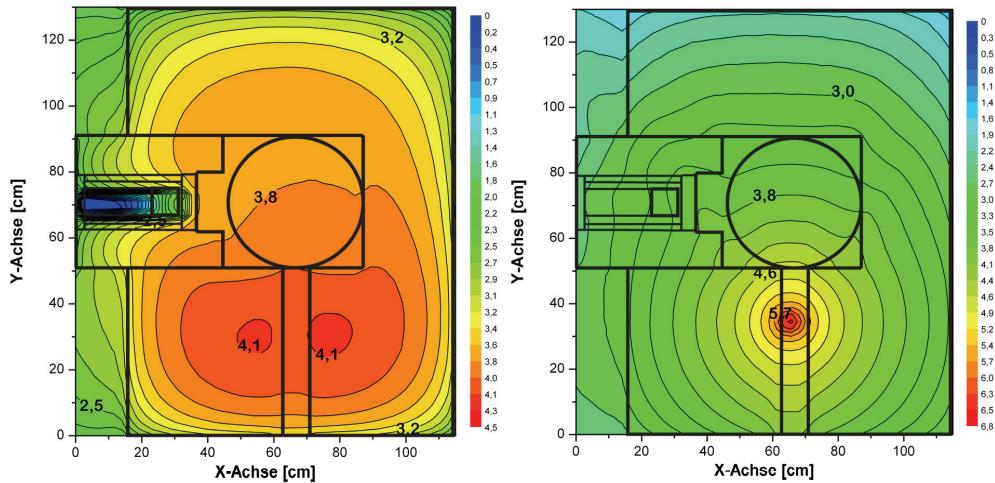


der leeren Graphitkammer eine Inhomogenität auf, die kleiner als eine halbe Größenordnung ist. Desweiteren ist der Effekt der  $^6\text{Li}$ -Abschirmung deutlich zu erkennen, der thermische Neutronenfluss ist um drei Größenordnungen im Detektor-Kristall reduziert.



**Abbildung 80:** Konturplot des thermischen (links) und des schnellen (rechts) Neutronenflusses in der leeren Graphitkammer. Die Neutronenquelle befindet sich jeweils im unteren Teil der Abbildungen. In beiden Fällen ist die Ansicht von oben, die Schnittebene befindet sich auf der Höhe des Neutronengenerators. Die Farbskalen zeigen den  $\log_{10}$ -Wert des Neutronenflusses.

Zum Vergleich mit der leeren Graphitkammer wurde der Neutronenfluss in der Graphitkammer mit einem betonierten 50-l-Stahlfass ( $1,6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) berechnet. In Abbildung 81 sind die entsprechenden Konturplots dargestellt.

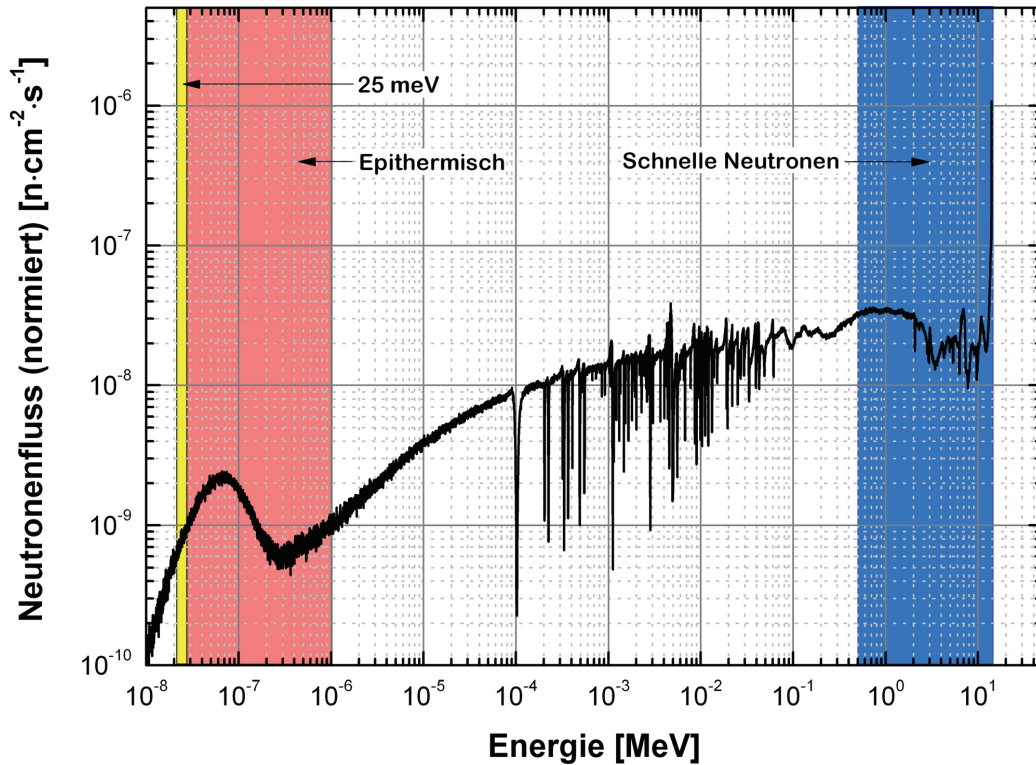


**Abbildung 81:** Konturplot des thermischen (links) und des schnellen (rechts) Neutronenflusses in der Graphitkammer mit dem betonierten Stahlfass. Die Neutronenquelle befindet sich jeweils im unteren Teil der Abbildungen. In beiden Fällen ist die Ansicht von oben, die Schnittebene befindet sich auf der Höhe des Neutronengenerators. Die Farbskalen zeigen den  $\log_{10}$ -Wert des Neutronenflusses.



Der thermische Neutronenfluss innerhalb des Betons hat die gleiche Größenordnung wie in der leeren Messkammer. Im Unterschied dazu hat sich die Inhomogenität des schnellen Neutronenflusses erhöht, sie entspricht über die Abmessungen des Betonfasses ungefähr einer Größenordnung.

Neben dem Neutronenspektrum in der Graphitkammer ist auch das Neutronenspektrum im HPGe-Detektor-Kristall von besonderem Interesse. Zwar konnte durch die  ${}^6\text{Li}$ -Abschirmung eine Reduzierung des thermischen Neutronenflusses erreicht werden, aber die Schäden an der Kristallstruktur entstehen vor allem durch die schnellen Neutronen. Es wurde mit MCNP das Neutronenspektrum in dem Germanium-Kristall berechnet (siehe Abbildung 82).

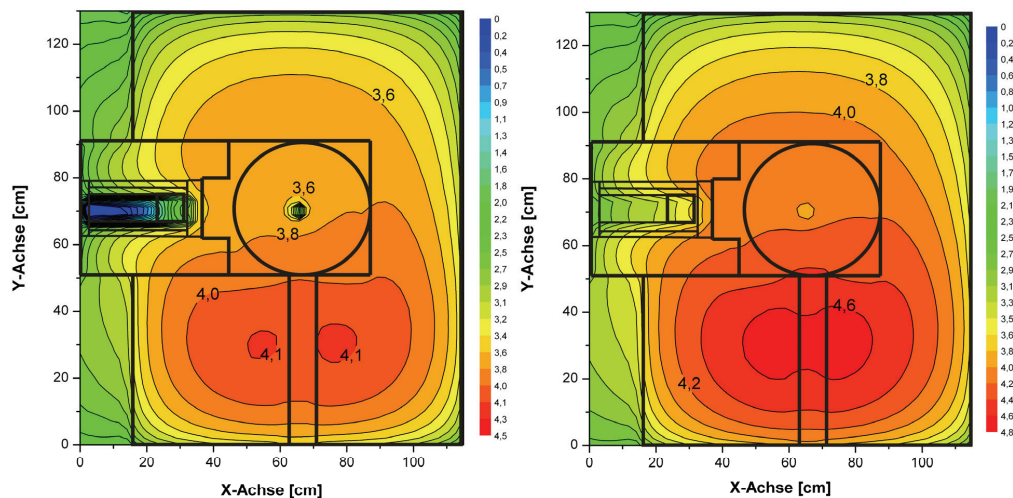


**Abbildung 82:** Neutronenspektrum im Detektor-Kristall. Für die Berechnung wurde, gemäß dem experimentellen Messaufbau, eine 5 mm dicke  ${}^6\text{LiF}$ -Abschirmung um den Detektor definiert. Die Absorptionen im Energiebereich zwischen 100 eV und 100 keV entstehen durch Resonanzen der Neutronen mit den Germanium-Kernen.

Es ist eindeutig zu erkennen, dass der kalte, thermische und epithermische Neutronenfluss im Verhältnis zu den äquivalenten Neutronenflüssen in der Graphitkammer deutlich reduziert ist. Der integrierte Neutronenfluss im kalten, thermischen und epithermischen Energiebereich hat einen Wert von  $1,78 \cdot 10^{-6} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , der integrierte schnelle Neutronenfluss liegt bei  $3,43 \cdot 10^{-5} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Anhand der Abbildung wird auch verständlich, warum die Neutronen in dem Energiebereich zwischen 1 eV und 1 keV als die sogenannten Resonanten-Neutronen bezeichnet werden. Die zum Teil stark ausgeprägten Resonanzen stammen von elastischen bzw. inelastischen Streuungen der Neutronen an den Germanium-Kernen. Anhand dieser Reaktionen lassen sich auch die erhöhten Neutronenflüsse

am Rande der Resonanzen erklären. Die elastischen  $(n, n0)$ - bzw. inelastischen  $(n, n')$ -Wirkungsquerschnitte zeigen erhebliche Sprünge im Bereich der Resonanzen, z. B. hat der  $(n, n0)$ -Wirkungsquerschnitt von  $^{72}\text{Ge}$  bei 2,611 keV einen Wert von 341  $\mu\text{b}$  und bei 2,621 keV einen Wert von 728 b [ENDF/B-VI], das ist ein Unterschied von mehr als 6 Größenordnungen. Der totale Wirkungsquerschnitt von  $^{73}\text{Ge}$  hat bei 100 eV einen Wert von über 9000 b.

Für die Untersuchung inhomogener Proben ist es wichtig zu wissen, in welcher Weise die Inhomogenität den Neutronenfluss, insbesondere den thermischen und epithermischen Neutronenfluss, beeinträchtigt. Es wurde eine MCNP-Simulation für eine Betonprobe mit einem Cadmium-Zylinder durchgeführt. Der Zylinder mit einem Durchmesser von 4 cm wurde in der Mitte des Betonfasses positioniert, seine Länge ging über die komplette Höhe des Fasses. Die Ergebnisse der Berechnung bestätigen die anfänglichen Vermutungen, dass der thermische Neutronenfluss nur lokal, im Bereich der Inhomogenität, beeinträchtigt wird. In Abbildung 83 ist der Konturplot des thermischen und epithermischen Neutronenflusses in der Graphitkammer mit der Betonprobe und dem Cadmium-Zylinder dargestellt. Im Gegensatz zum thermischen Neutronenfluss stellt der Cadmium-Zylinder für den epithermischen Neutronenfluss nur eine geringfügige Beeinträchtigung dar, lokal reduziert sich der Neutronenfluss um 0,2 Größenordnungen. Daher sollte für die Quantifizierung von starken Neutronenabsorbern, wie z. B. Cadmium, Bor oder Quecksilber, der mittlere epithermische Wirkungsquerschnitt in den Gleichungen 5.2, - 5.10 benutzt werden. Für den schnellen Neutronenfluss gibt es bei einer Betonprobe mit und ohne Cadmium-Zylinder keinen Unterschied.



**Abbildung 83:** Konturplot des thermischen (links) und des epithermischen (rechts) Neutronenflusses für eine Betonprobe ( $1,6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) mit einem Cadmium-Zylinder ( $8,65 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) in seinem Zentrum. Die Farbskalen zeigen den  $\log_{10}$ -Wert des Neutronenflusses.

## 11.2. Bestimmung thermischer und epithermischer Neutronenspektren mit Resonanzsonden

Die Vermessung eines Neutronenfeldes mit einem breiten Energiespektrum, von über neun Größenordnungen, stellt sich sehr schwierig dar. Zum einen soll gezeigt werden, dass der thermische Neutronenfluss in der Messkammer homogen verteilt ist und zum anderen die Größenordnung des

thermischen Neutronenflusses bestimmt werden. Es kommen verschiedene technische Möglichkeiten für die Vermessung des Neutronenfeldes in Betracht. Neutronenspektrometer auf Basis der Bonnerkugel<sup>50</sup> eignen sich zwar um unbekannte Neutronenfelder mit einem weiten Energiebereich (25 meV bis 400 MeV) zu messen, aber die Kugeln sind zu groß, um eine punktuelle Vermessung der Graphitkammer durchzuführen. Eine Alternative für die Messung thermischer bzw. epithermischer Neutronenfelder sind sogenannte Resonanzsonden. Dabei handelt es sich um Substanzen, deren Aktivierungsquerschnitt bei einer bevorzugten Energie eine starke Resonanz aufweist [Ehret1961]. Um nur den epithermischen Neutronenfluss zu messen, werden die Resonanzdetektoren in Cadmium eingehüllt. Als Resonanzsonden kommen nur wenige Substanzen infrage, weil sie einige Forderungen erfüllen müssen:

- Es muss eine dominierende Hauptresonanz vorhanden sein.
- Die Absorption eines Neutrons muss zu  $\beta$ - bzw.  $\gamma$ -Aktivitäten führen.
- Die Halbwertszeit der Aktivierungsprodukte muss geeignet sein.
- Die Substanz muss sich zu einer Folie auswalzen lassen.

In Tabelle 40 sind die wenigen Elemente aufgeführt, die diese Forderungen erfüllen und eine saubere Messung ermöglichen.

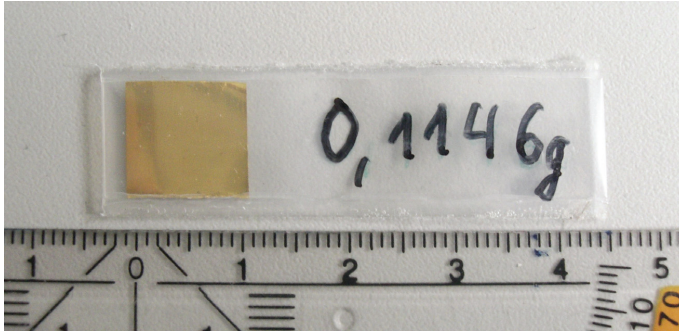
**Tabelle 40:** Auflistung der Elemente, die für die Verwendung als Resonanzsonde geeignet sind [Ehret1961].

Element	Energie der Hauptresonanz [eV]	Isotop	Halbwertszeit
In	1,46	<sup>115</sup> In	54 m
Au	4,9	<sup>197</sup> Au	2,7 d
W	18,8	<sup>186</sup> W	24 h
La	73,5	<sup>139</sup> La	40 h
Mn	337	<sup>55</sup> Mn	2,56 h

Gold hat einen thermischen Einfangwirkungsquerschnitt von 98,65 b und eine sehr hohe Resonanz von 27338 b im epithermischen Bereich bei 4,9 eV. Im Anhang A8 sind der Total- und der Einfangwirkungsquerschnitt von <sup>197</sup>Au im Energiebereich von 10  $\mu$ eV bis 20 MeV dargestellt. Für die Messungen des Neutronenflusses wurden fünf Goldfolien mit einer Dicke von  $50 \pm 4 \mu\text{m}$  (siehe Abbildung 84), an Fäden hängend, an verschiedenen Stellen in der Graphitkammer positioniert. Die leere Messkammer wurde im CW-Modus über einen Zeitraum von 3600 s bei einer Quellstärke von  $1 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  bestrahlt. Anschließend wurden die Plastikfolien, in denen die Goldfolien eingeschweißt waren, entfernt und jede Goldfolie mittels Gamma-Spektrometrie in einem „Low-Level“-Messplatz gemessen. Die Messzeit betrug jeweils 1200 s. Die Energieabhängigkeit der Photopeak-Effizienz des verwendeten Detektors ist im Anhang A9 dargestellt. Die Haupt-Gamma-Linie von Gold, mit einer Intensität von 96 %, liegt bei 411 keV. Das Spektrometer hat bei dieser Energie einen absoluten Wert

<sup>50</sup> Mit dem "Bonnerkugel-Spektrometer" kann die Neutronenfluenz sowie die Energieverteilung von Neutronen bestimmt werden. Das Spektrometer der PTB (Modell NEMUS) besteht aus einem Satz von 12 Moderatorokugeln aus Polyäthylen von 7,62 cm bis 45,72 cm Durchmesser. In deren Zentrum befinden sich kugelförmige Proportionalzähler, die mit <sup>3</sup>He-Gas gefüllt sind und daher für thermalisierte Neutronen besonders empfindlich sind.

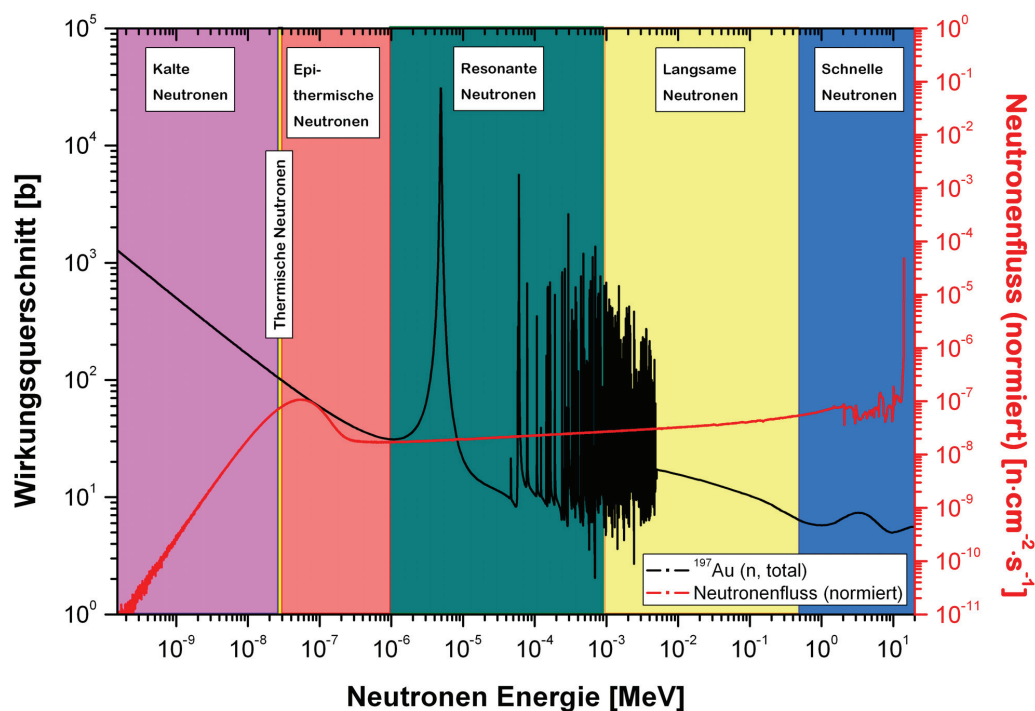
der Photopeak-Effizienz von 0,041. Anhand dieser Informationen und den Ergebnissen der Netto-Peakflächen bei 411 keV der einzelnen Goldfolien konnten die jeweiligen Aktivitäten berechnet werden (siehe Tabelle 41).



**Abbildung 84:** Foto einer der fünf Goldfolien. Die Folien wurden, nachdem sie in einem Säurebad gereinigt wurden, in eine dünne ( $< 1$  mm) Plastikfolie eingeschweißt, um eine mögliche Kontamination mit Graphit oder anderen Verunreinigungen zu vermeiden.

Die Berechnung des mittleren thermischen Neutronenflusses bzw. des epithermischen Neutronenflusses aus den gewonnenen Ergebnissen ist kompliziert, weil sich die Aktivierung des Goldes nicht einer eindeutigen Energie zuordnen lässt. Es war leider nicht mehr möglich eine Messung mit einem Sandwich aus einer Cadmium- und Goldfolie durchzuführen. Das Cadmium hätte die kalten und thermischen Neutronen

absorbiert und so eine besser Aussage über den epithermischen bzw. resonanten Neutronenfluss zugelassen. In Abbildung 85 sind der totale Wirkungsquerschnitt von  $^{197}\text{Au}$  [ENDF/B-VI] und das mit MCNP berechnete Neutronenspektrum einander gegenübergestellt.



**Abbildung 85:** Gegenüberstellung des totalen Wirkungsquerschnitts von  $^{197}\text{Au}$  und dem mit MCNP berechneten Neutronenspektrum in der leeren Graphitkammer.

Im Bereich der resonanten Neutronen gibt es neben der dominierenden Resonanz bei 4,9 eV viele weitere Resonanzen, weshalb sich ein repräsentativer Wirkungsquerschnitt nur auf Umwegen festlegen lässt. Das Neutronenspektrum verläuft in diesem Energiebereich relativ flach, sodass das arithmetische Mittel mit einem Wert von 240 b für den repräsentativen Wirkungsquerschnitt bestimmt wurde. Für den kalten, thermischen und epithermischen Energiebereich ist es nicht sinnvoll das arithmetische Mittel zu bilden, weil der Wirkungsquerschnitt nach dem  $1/v$ -Gesetz abfällt und gleichzeitig das Neutronenspektrum ein lokales Maximum hat. Für die Berechnung des mittleren Neutronenflusses in diesem Bereich wurde der Wirkungsquerschnitt der thermischen Neutronen, mit einem Wert von 100 b, als repräsentativ angenommen. Anhand der Aktivierungsformel 2.1, der berechneten Aktivierung und den repräsentativen Wirkungsquerschnitten wurden die mittleren Neutronenflüsse für kalte, thermische, epithermische und resonante Neutronen bestimmt. In Tabelle 41 sind die Ergebnisse dargestellt.

**Tabelle 41:** *Ergebnisse der Resonanzsondenmessung.*

Folie	Masse	Netto- Peakfläche	Zählrate bei 411 keV	Aktivität	Mittlerer kalter, thermischer und epithermischer Neutronenfluss	Resonanter Neutronenfluss
	[g]		[s <sup>-1</sup> ]	[Bq]	[n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]	[n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]
Mitte der Kammer	0,1267	495 (23)	0,41 (02)	10,48 (49)	25362 (15471)	10567 (4544)
Detektor Seite	0,106	406 (20)	0,33 (02)	8,57 (42)	24803 (15130)	10334 (4444)
NG Seite	0,1146	530 (23)	0,44 (02)	11,22 (49)	30022 (18313)	12509 (5379)
Gegenüber vom Detektor	0,1158	512 (23)	0,43 (02)	10,84 (49)	28702 (17508)	11959 (5142)
Gegenüber vom NG	0,1168	505 (22)	0,42 (02)	10,69 (47)	28067 (17121)	11694 (5028)

### 11.3. Neutronenfluss in einer Beton-Probe

Der thermische und schnelle Neutronenfluss in einer Betonprobe kann durch die Auswertung geeigneter Prompt-Gamma-Linien der im Beton enthaltenen Elemente bestimmt werden. Dabei ist es allerdings schwierig, die Energiebereiche „kalt“, „thermisch“ und „epithermisch“, so wie in den vorangegangenen Kapiteln, klar voneinander zu trennen. Die Aktivierung kann mit kalten, thermischen und epithermischen Neutronen erfolgen, daher wird die Bezeichnung „mittlerer thermischer Neutronenfluss“ im Folgenden stellvertretend benutzt. In dem Prompt-Gamma-Spektrum von Probenfass Nr. 2 sind viele Gamma-Linien der im Beton enthaltenen Elemente zu finden. Die genaue Zusammensetzung des Betons wurde mit dem zertifizierten PGNA-System in Budapest ermittelt (siehe Anhang A7). Anhand dieser Ergebnisse wurde die Menge der relevanten Elemente berechnet. Zusammen mit der bekannten Effizienz  $\varepsilon(E_\gamma)$  des Detektors und den bekannten Wirkungsquerschnitten  $\sigma(E_\gamma)$  kann die gemessenen Netto-Peakflächen  $P(E_\gamma)$  genutzt werden, um den thermischen und schnellen Neutronenfluss in der Betonprobe zu berechnen. Dafür werden die Gleichungen 5.3, 5.6 und 5.10 in Kapitel 5 benutzt, in Tabelle 42 sind die Ergebnisse aufgelistet.

**Tabelle 42:** Mittlerer thermischer  $\phi_{th}$  und mittlerer schneller Neutronenfluss  $\phi_f$  in Probenfass Nr. 2. Das Fass wurde im Pulsmodus (1000-100-72-8) mit einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  bestrahlt.

Element	Menge [g]	Reaktion	$E_\gamma$ [keV]	$\sigma(E_\gamma)$ [b]	$\varepsilon(E_\gamma)$	$P(E_\gamma)$	$\phi_{th}$ [n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]	$\phi_f$ [n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]
H	155,80	$^1\text{H}(\text{n}, \gamma)^2\text{H}$	2223	0,3326	$219,14 \cdot 10^{-6}$	8578 (549)	1092 (130)	-
Ca	3382	$^{40}\text{Ca}(\text{n}, \gamma)^{41}\text{Ca}$	1943	0,352	$227,56 \cdot 10^{-6}$	4939 (664)	1048 (175)	-
Si	14060	$^{28}\text{Si}(\text{n}, \gamma)^{29}\text{Si}$	1273	0,0289	$243,70 \cdot 10^{-6}$	2591 (233)	1054 (142)	-
		$^{28}\text{Si}(\text{n}, \gamma)^{29}\text{Si}$	2093	0,0331	$223,17 \cdot 10^{-6}$	2341 (257)	908 (135)	-
		$^{28}\text{Si}(\text{n}, \gamma)^{29}\text{Si}$	3539	0,1190	$170,81 \cdot 10^{-6}$	7001 (798)	987 (150)	-
		$^{28}\text{Si}(\text{n}, \gamma)^{29}\text{Si}$	4934	0,1120	$115,29 \cdot 10^{-6}$	4998 (447)	1109 (149)	-
		$^{28}\text{Si}(\text{n}, \text{p})^{28}\text{Al}$	1779	0,220	$230,51 \cdot 10^{-6}$	8749 (825)	-	$1,69 \cdot 10^4$ ( $0,30 \cdot 10^4$ )
O	17974	$^{16}\text{O}(\text{n}, \text{p})^{16}\text{N}$	6130	0,0274	$74,14 \cdot 10^{-6}$	1056 (97)	-	$1,92 \cdot 10^4$ ( $0,34 \cdot 10^4$ )
Arithmetisches Mittel							1033 (74)	$1,80 \cdot 10^4$ ( $0,16 \cdot 10^4$ )

## 11.4. Das Stahlfass als Neutronenmonitor

Da die Neutronenflüsse innerhalb der Betonprobe dieselbe Größenordnung haben wie an der Probenoberfläche wurde überlegt, den mittleren thermischen bzw. mittleren schnellen Neutronenfluss über die Aktivierung des Stahlfasses zu bestimmen. Eisen, aus dem Stahl zu über 99 % besteht, hat sehr viele Gamma-Linien über einen Energiebereich von 100 keV bis 9,3 MeV, die eine ausreichende Intensität besitzen, um sie auszuwerten. Das leere 25-l-Stahlfass wurde bei einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  im Pulsmodus über einen Zeitraum von 1158 s untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 1 ms und einer Pulslänge von 35  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 42 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,9 \cdot 10^6$  Pulsen. Das Prompt-Gamma-Spektrum des Stahlfasses wurde anschließend im Bezug auf die Aktivierung des Eisens ausgewertet. Analog zu der Vorgehensweise im vorangegangenen Abschnitt wurde aus den gemessenen Daten der mittlere thermische und mittlere schnelle Neutronenfluss berechnet. In Tabelle 43 sind die entsprechenden Ergebnisse aufgelistet.

**Tabelle 43:** Berechnung des mittleren thermischen und mittleren schnellen Neutronenflusses an der Oberfläche des leeren 25-l-Stahlfasses, anhand der prompten und verzögerten Gamma-Linien von Eisen.

Reaktion	$E_\gamma$ [keV]	$\sigma(E_\gamma)$ [b]	$\varepsilon(E_\gamma)$	$P(E_\gamma)$	$\phi_{th}$ [n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]	$\phi_f$ [n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]
$^{56}\text{Fe}(\text{n}, \gamma)^{57}\text{Fe}$	352	0,273	$1,2416 \cdot 10^{-3}$	25101 (1255)	758 (85)	-
	692	0,137	$895,28 \cdot 10^{-6}$	10288 (411)	859 (95)	-
	898	0,0540	$794,08 \cdot 10^{-6}$	3456 (276)	825 (106)	-
	921	0,0199	$785,29 \cdot 10^{-6}$	1388 (291)	910 (211)	-
	1019	0,0507	$750,68 \cdot 10^{-6}$	3018 (271)	812 (109)	-
	1260	0,0684	$683,26 \cdot 10^{-6}$	3547 (477)	777 (130)	-
	1613	0,1530	$610,35 \cdot 10^{-6}$	7450 (447)	817 (95)	-
	1725	0,181	$590,64 \cdot 10^{-6}$	9536 (572)	914 (106)	-
	3413	0,0449	$365,86 \cdot 10^{-6}$	1654 (165)	1031 (145)	-
	3437	0,045	$363,23 \cdot 10^{-6}$	1763 (176)	1105 (156)	-

Reaktion	$E_\gamma$ [keV]	$\sigma(E_\gamma)$ [b]	$\varepsilon(E_\gamma)$	$P(E_\gamma)$	$\phi_{th}$ [n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]	$\phi_r$ [n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]
<sup>56</sup> Fe(n, $\gamma$ ) <sup>57</sup> Fe	4218	0,099	281,69·10 <sup>-6</sup>	2109 (232)	775 (115)	-
	5920	0,225	145,95·10 <sup>-6</sup>	3225 (225)	1006 (123)	-
	6019	0,227	139,87·10 <sup>-6</sup>	3272 (196)	1056 (123)	-
<sup>54</sup> Fe(n, $\gamma$ ) <sup>55</sup> Fe	412	0,022	1,1526·10 <sup>-3</sup>	1680 (554)	679 (234)	-
<sup>57</sup> Fe(n, $\gamma$ ) <sup>58</sup> Fe	811	0,0274	831,86·10 <sup>-6</sup>	2236 (358)	1005 (190)	-
Arithmetisches Mittel					914 (158)	-
<sup>56</sup> Fe(n, p) <sup>56</sup> Mn	847*	0,104	799,91·10 <sup>-6</sup>	2517 (176)		1,87·10 <sup>5</sup> (0,19·10 <sup>5</sup> )

\* verzögerte Gamma-Linie

Zum Vergleich wurden das Prompt-Gamma-Spektrum von Probenfass Nr. 2 im Bezug auf die Eisen-Aktivierung hin analysiert. Das Probenfass wurde unter den gleichen Bedingungen wie das leere Stahlfass bestrahlt. Unter der Berücksichtigung, dass die Photopeak-Effizienz in diesem Fall viel niedriger ist (siehe Abschnitt 8.4), wurde anhand der Netto-Peakflächen der thermische und schnelle Neutronenfluss berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 44 dargestellt. Der mittlere thermische Neutronenfluss stimmt mit den Werten in Tabelle 42 gut überein. Das Stahlfass kann als Monitor für den mittleren thermischen Neutronenfluss in der Beton-Probe genutzt werden. Der mittlere schnelle Neutronenfluss ist im Falle des betonierten Stahlfasses um das 9fache geringer, was sich auf die Selbstabsorption der Neutronen und Photonen in der Beton-Probe zurückführen lässt.

**Tabelle 44:** Berechnung des mittleren thermischen und mittleren schnellen Neutronenflusses in einem betonierten Stahlfass (Probenfass Nr. 2), anhand der prompten und verzögerten Gamma-Linien von Eisen.

Reaktion	$E_\gamma$ [keV]	$\sigma(E_\gamma)$ [b]	$\varepsilon(E_\gamma)$	$P(E_\gamma)$	$\phi_{th}$ [n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]	$\phi_r$ [n·cm <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> ]
<sup>56</sup> Fe(n, $\gamma$ ) <sup>57</sup> Fe	352	0,273	675,64·10 <sup>-6</sup>	15997 (960)	888 (104)	-
	692	0,137	508,01·10 <sup>-6</sup>	6262 (751)	922 (144)	-
	898	0,0540	462,23·10 <sup>-6</sup>	2082 (250)	854 (133)	-
	921	0,0199	458,56·10 <sup>-6</sup>	853 (162)	958 (206)	-
	1019	0,0507	443,20·10 <sup>-6</sup>	1998 (220)	911 (135)	-
	1260	0,0684	413,51·10 <sup>-6</sup>	3101 (417)	1123 (188)	-
	1613	0,1530	380,44·10 <sup>-6</sup>	5286 (370)	930 (113)	-
	1725	0,181	371,13·10 <sup>-6</sup>	6586 (329)	1004 (112)	-
	3413	0,0449	249,30·10 <sup>-6</sup>	1364 (177)	1248 (204)	-
	3437	0,045	247,71·10 <sup>-6</sup>	1203 (156)	1105 (181)	-
	4218	0,099	196,92·10 <sup>-6</sup>	1845 (166)	969 (130)	-
	5920	0,225	105,93·10 <sup>-6</sup>	2792 (167)	1200 (140)	-
	6019	0,227	101,69·10 <sup>-6</sup>	2788 (307)	1237 (184)	-
<sup>54</sup> Fe(n, $\gamma$ ) <sup>55</sup> Fe	412	0,022	631,28·10 <sup>-6</sup>	1731 (380)	1053 (254)	-
<sup>57</sup> Fe(n, $\gamma$ ) <sup>58</sup> Fe	811	0,0274	479,21·10 <sup>-6</sup>	1309 (222)	1021 (201)	-
Arithmetisches Mittel					1028 (128)	-
<sup>56</sup> Fe(n, p) <sup>56</sup> Mn	847*	0,104	410,07·10 <sup>-6</sup>	1127 (169)		1,64·10 <sup>5</sup> (0,29·10 <sup>5</sup> )

\* verzögerte Gamma-Linie

Anhand der Berechnung des mittleren schnellen Neutronenflusses, der über die Prompt-Gamma-Linien des Eisens bestimmt wird, kann direkt der mittlere schnelle Neutronenfluss im Betonfass

ermittelt werden. Dafür ist der makroskopische Wirkungsquerschnitt für die Absorption von 14 MeV Neutronen in Beton notwendig, dieser hat einen Wert von  $\sigma_{Beton} = 0,0603 \text{ cm}^{-1}$ . Mithilfe der folgenden Gleichung kann der mittlere schnelle Neutronenfluss in der Betonprobe abgeschätzt werden:

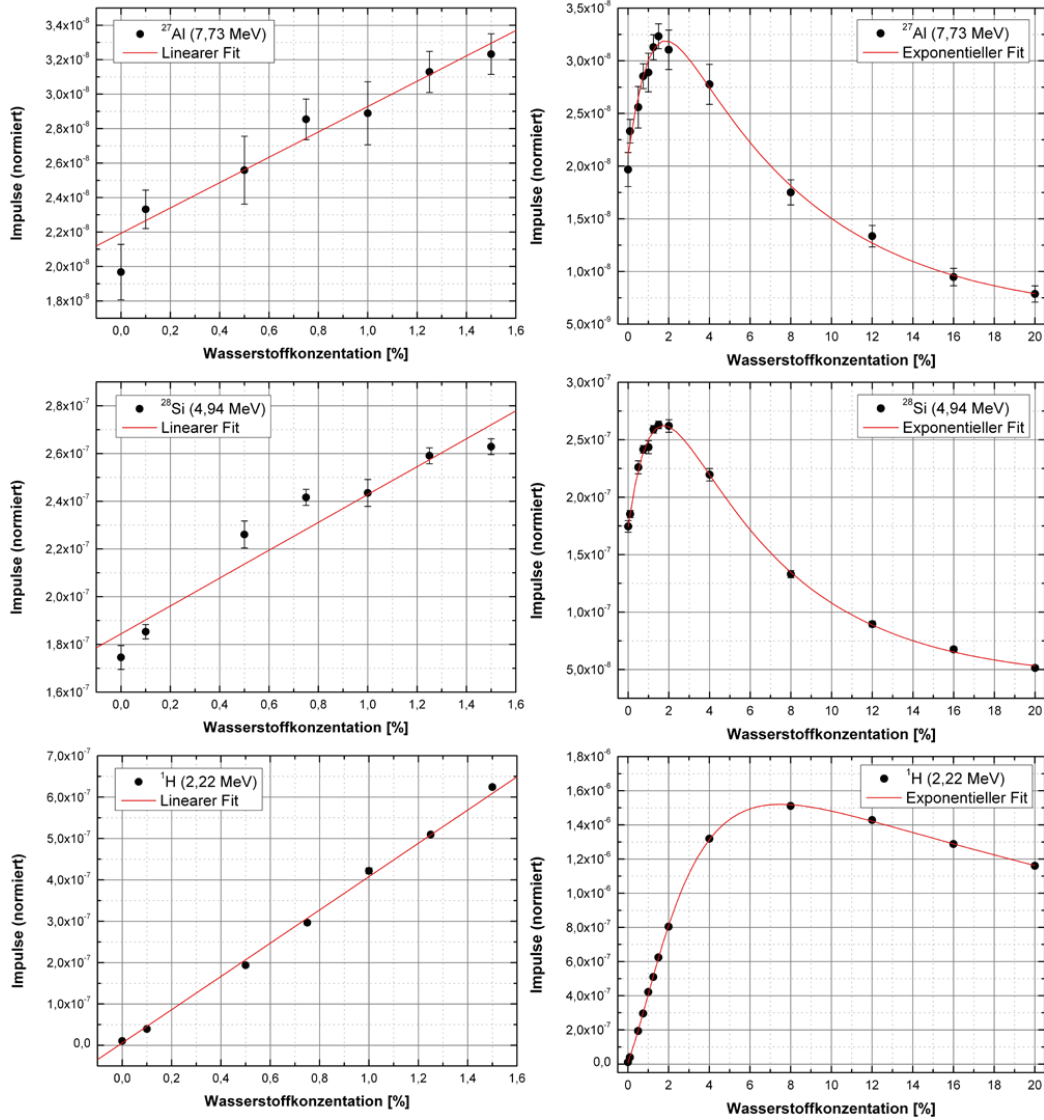
$$\phi_{f,Beton} = \phi_{f,Stahlfass} \cdot \exp(-\sigma_{Beton} \cdot D) \quad (11.1)$$

Hierbei ist  $D$  der Durchstrahlungsweg der Neutronen. Im Fall von Probenfass Nr. 2 hat  $D$  einen Wert von 37,5 cm (Fassdurchmesser). Wird der Wert für  $\sigma_{f,Stahlfass}$  aus Tabelle 44 in Gleichung 11.1 eingesetzt, ergibt sich für  $\sigma_{f,Beton} = 1,71 \cdot 10^4 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Dieser Wert stimmt mit einer Abweichung von 5 % mit dem Wert  $\sigma_f = 1,80 \cdot 10^4 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  aus Tabelle 42 überein.

### 11.5. Der thermische Neutronenfluss in Abhängigkeit von der Probenzusammensetzung

Der thermische Neutronenfluss innerhalb einer Probe wird durch die Elementzusammensetzung beeinflusst, im Wesentlichen spielt die Wasserstoffkonzentration eine entscheidende Rolle [Trubner1991]. Durch die Moderationseigenschaften von Wasserstoff, erhöht sich der thermische Neutronenfluss in der Probe mit zunehmender Wasserstoffkonzentration, infolgedessen steigt die Anzahl der Aktivierungen der übrigen Elemente in der Probe. Um die Frage zu lösen, in welcher Weise die Aktivierung der Probe von der Wasserstoffkonzentration abhängt, wurde eine MCNP-Studie durchgeführt. Die Gamma-Linien einiger ausgewählter Isotope in dem simulierten Prompt-Gamma-Spektrum wurden ausgewertet und ihre Netto-Peakflächen berechnet. Bei steigender Wasserstoffkonzentration in einer Betonmatrix ( $1,6 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) wurden die Veränderungen dieser Netto-Peakflächen untersucht. Die Ergebnisse zeigen, dass die Aktivierungen bis zu einer Wasserstoffkonzentration von 1,6 % linear ansteigen und bei höheren Werten exponentiell abnehmen. Der Wasserstoff fängt bei einer Konzentration von über 2 % mehr Neutronen ein, als er moderiert, weshalb die Aktivierung sehr rapide abnimmt. In Abbildung 86 sind die Impulse der Haupt-Gamma-Linien von  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{28}\text{Si}$  und  $^1\text{H}$  dargestellt. Die Aktivierung des Wasserstoffs erreicht bei einer Konzentration von 8 % ihre Sättigung und nimmt bei noch höheren Konzentrationen linear ab. In der Realität sind Wasserstoffkonzentrationen von über 1 % in Beton, was einem Wassergehalt von 9 % entsprechen würde, normalerweise nicht zu finden [VDZ2007, S. 125]. Für den im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Beton wurde durch die Analysen in Budapest eine Wasserstoffkonzentration von  $0,41 \pm 0,01 \text{ %}$  ermittelt. Dieser Wert kennzeichnet einen relativ trockenen Beton.

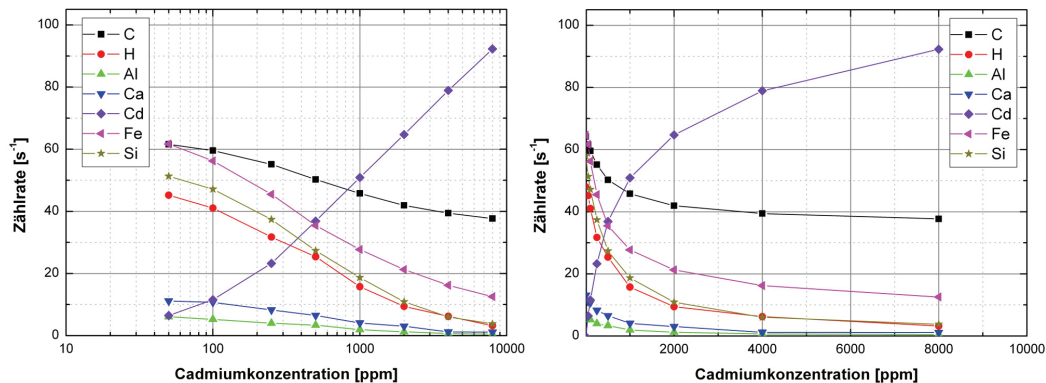




**Abbildung 86:** Mit MCNP berechneten Impulse der Haupt-Gamma-Linien von  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{28}\text{Si}$  und  $^1\text{H}$  in Abhängigkeit von der H-Konzentration. In den Diagrammen links ist der Bereich von 0 bis 1,6 % und rechts in dem Bereich von 0 bis 20 % Wasserstoffkonzentration dargestellt.

Der thermische Neutronenfluss in der Probe wird nicht nur durch Moderator-Elemente wie Wasserstoff beeinflusst, sondern auch durch Absorbermaterialien, wie Cadmium. In einer MCNP-Studie wurde die Abhängigkeit der Haupt-Gamma-Linien von  $^{12}\text{C}$ ,  $^1\text{H}$ ,  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{40}\text{Ca}$ ,  $^{56}\text{Fe}$  und  $^{28}\text{Si}$  von der in einer 50-l-Betonprobe (115 kg) homogen verteilten Cd-Konzentration untersucht. Die Probenzusammensetzung wurde entsprechend den Ergebnissen der Analysen in Budapest definiert, abweichend davon lag die Wasserstoffkonzentration bei 0,56 %. Die Gamma-Linie von Kohlenstoff stammt von der Aktivierung der Graphitabschirmung und die Gamma-Linie von Eisen primär von der Aktivierung des Stahlfasses. In Abbildung 87 sind die Ergebnisse der Simulationen dargestellt.

Die Zählraten der Haupt-Gamma-Linien der sieben Elemente wurden sowohl logarithmisch, als auch linear gegenüber der Cadmiumkonzentration aufgetragen. Der thermische Neutronenfluss fällt mit steigender Cd-Konzentration, dadurch nimmt auch die Aktivierung der untersuchten Elemente ab. Ab einer Konzentration von 2000 ppm geht die Aktivität von Cadmium in eine Sättigung über, dementsprechend mindert sich auch die Aktivierung der übrigen Elemente. Bei Kohlenstoff ist der Effekt weniger stark ausgeprägt, da der thermische Neutronenfluss in dem Graphit von der Cadmiumkonzentration in der Probe geringer beeinflusst wird.



**Abbildung 87:** Zählraten der Prompt-Gamma-Linien ausgesuchter Elemente als Funktion der Cadmiumkonzentration (links logarithmisch, rechts linear). Die Quellstärke hatte bei allen MCNP-Simulationen einen Wert von  $1 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$ .

In einer abschließenden MCNP-Studie wurde sowohl die Wasserstoffkonzentration, als auch die Cadmiumkonzentration gezielt verändert und der resultierende thermische Neutronenfluss berechnet. Die Definition der Probenzusammensetzung war identisch mit der oben dargestellten 50-l-Betonprobe. In Abbildung 88 ist der thermische Neutronenfluss in Abhängigkeit von der H-Konzentration für verschiedene Cd-Konzentrationen dargestellt. Die Ergebnisse der Studie zeigen, dass der Neutronenfluss ab einer Wasserstoffkonzentration von 3 % in eine Sättigung übergeht. Bei steigender Cadmiumkonzentration nimmt der Übergang in die Sättigung flacher zu. Der thermische Neutronenfluss nimmt bei einer Cadmiumkonzentration von über 1000 ppm linear mit steigender Wasserstoffkonzentration zu [Bai2010].

Bei der Interpretation der Ergebnisse muss beachtet werden, dass sowohl die H- als auch die Cd-Konzentration homogen in der Betonprobe verteilt ist. Für eine inhomogene Konzentrationsverteilung in der Probe stellt sich die Neutronenfluss-Abhängigkeit ganz anders dar [Bai2009].

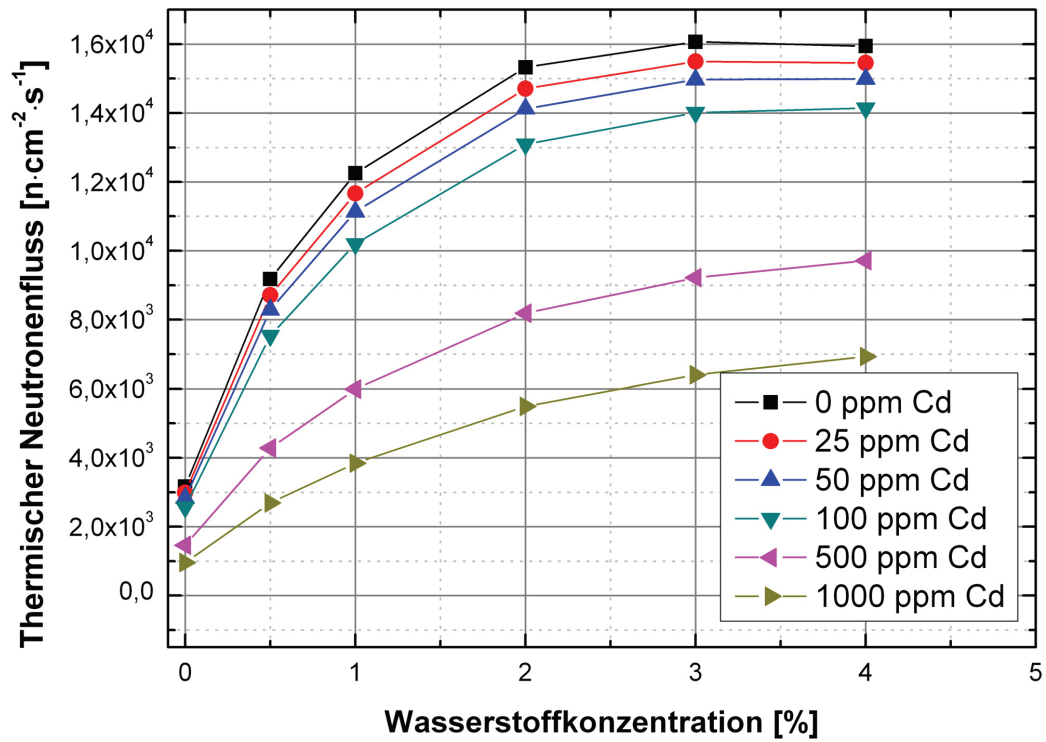


Abbildung 88: Thermischer Neutronenfluss in der 115-kg-Betonprobe in Abhängigkeit von der Wasserstoff- und Cadmiumkonzentration. Die Quellstärke hatte bei allen MCNP-Simulationen einen Wert von  $1 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$ .

# Kapitel 12

## Nachweisgrenzen

### Zusammenfassung

Die Nachweisgrenzen ausgewählter Elemente wurden für verschiedene Bestrahlungs- und Messbedingungen bestimmt. Die Basis für die Berechnungen bildeten die Ergebnisse der in den vorangegangenen Kapiteln beschriebenen Experimente. Vielversprechende Vorteile gegenüber etablierten PGNAA-Systemen konnten dadurch erreicht werden, dass für die Berechnung der Nachweisgrenzen die zyklische Neutronen-Aktivierung benutzt wurde. Für einige Elemente werden mithilfe schneller Neutronen um bis zu zwei Größenordnungen niedrigere Nachweisgrenzen erreicht, als sie durch die Aktivierung mit thermischen Neutronen möglich ist.

## 12.1. Definition der Nachweisgrenze - Werte etablierter PGNAA-Systeme

Die Nachweisgrenze bezieht sich auf die quantitative Charakterisierung der Probenfässer. Sie bezeichnet die minimale Menge eines identifizierten Elementes, welche mit dem PGNAA-System gerade noch zuverlässig nachgewiesen kann. Es gibt verschiedene Definitionen der Nachweisgrenze [Currie1968; DeGeer2004]. In der Regel wird das Kriterium des zuverlässigen Nachweises auf die Präzision des Messverfahrens bei einer Nullprobenmessung oder einer Hintergrundmessung bezogen. Damit ist der statistische Fehler bzw. die Schwankung des Messsignals, wenn keine Probe vorhanden ist, gemeint [DIN32645]. Im Rahmen dieser Arbeit gilt ein Messwert als gültig (als Nachweis), wenn der Wert oberhalb  $3\sigma$  der Untergrundfläche (UF) des zu erwartenden Photopeaks liegt:

$$P_{NWG} = 3 \cdot \sqrt{UF} \quad (12.1)$$

Da die PGNAA ein seit Jahrzehnten erprobtes Messverfahren ist, gibt es an vielen Forschungseinrichtungen bzw. Forschungsreaktoren auf der Welt PGNAA-Messsysteme zur Charakterisierung kleiner Proben. Die Nachweisgrenzen konnten, dank technologischer Entwicklungen stetig, aber nicht sprunghaft verbessert werden. In Tabelle 45 sind die Nachweisgrenzen der modernen PGNAA-Systeme in Garching [Kudejová2005] und in Budapest [Molnár2004] dargestellt, sie stimmen größtenteils mit den Nachweisgrenzen älterer Systeme [Henkelmann1973; Hanna1980] überein.

**Tabelle 45:** Nachweisgrenzen für moderne PGNAA-Systeme (zur Charakterisierung kleiner Proben) an Forschungsreaktoren [Kudejová2005; Molnár2004, S. 145ff].  $\phi_{th} = 1 \cdot 10^6 - 1 \cdot 10^7 [n \cdot cm^2 \cdot s^{-1}]$ ,  $\epsilon_{rel} = 30 \%$ .

Nachweisgrenze [ppm]	Elemente
0,001 – 0,1	B, Cd, Sm, Eu, Gd
0,1 – 1	H, In, Hf, Hg, Dy, Er
1 – 10	Na, Cl, K, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, As, Se, Br, Sr, Mo, Rh, Ag, Xe, Ta, Re, Pt, Au, Ho, Tm, Yb, Lu
10 – 100	Li, Be, Mg, Al, Si, S, Ca, Fe, Zn, Ga, Ge, Y, Zr, Nb, Ru, Pd, Sb, Te, I, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Tb, W, Os, Ir, Tl, U
100 – 1000	N, F, P, Rb, Sn, Pb, Th
> 1000	C, O, Bi

## 12.2. Nachweisgrenzen des PGNAA-Prototypsystems

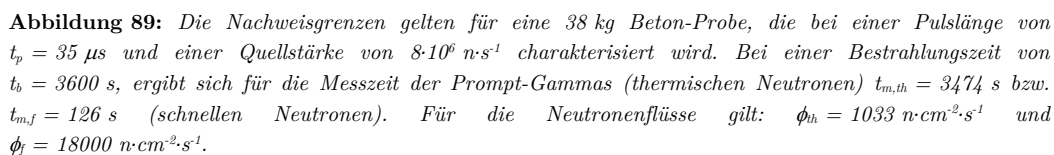
Die Bestimmung der Nachweisgrenzen basiert auf den Ergebnissen der berechneten Neutronenflüsse  $\phi$ , Photopeak-Effizienzen  $\epsilon$  und der Auswertung der Prompt-Gamma-Spektren. Die Wirkungsquerschnitte  $\sigma_\gamma$  für die jeweiligen Kernreaktionen und die molaren Massen  $M$  der verschiedenen Elemente sind tabelliert [IAEA1998; IAEA2007; Fluck1999]. Die Nachweisgrenzen wurden für ausgewählte Elemente in einer 38 kg schweren Beton-Probe, äquivalent zu Probenfass Nr. 1 und 2, berechnet. Entsprechend der zyklischen Neutronen-Aktivierung werden die Nachweisgrenzen auf vier verschiedene Weisen bestimmt. Für einige Elemente wurden daher unterschiedliche Nachweisgrenzen berechnet. Die Klassifizierung der Nachweisgrenzen erfolgt nach der Definition in Abschnitt 5.2:

1. Prompte-Gamma-Aktivierung mit schnellen Neutronen
2. Prompte-Gamma-Aktivierung mit thermischen Neutronen
3. Verzögerte-Gamma-Aktivierung mit schnellen Neutronen
4. Verzögerte-Gamma-Aktivierung mit thermischen Neutronen

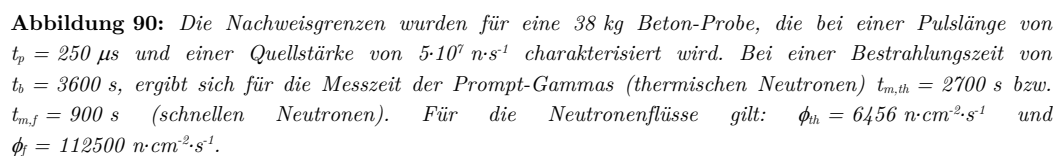
Für die Berechnung der jeweiligen Nachweisgrenzen werden die zu erwartenden Netto-Peakflächen der Haupt-Gamma-Linien der ausgewählten Elemente, gemäß dem  $3\sigma$ -Konzept, benötigt. Die Werte der Netto-Peakflächen wurden je nach Aktivierungsfall in die Gleichungen 5.2 bis 5.10 eingesetzt und damit die Nachweisgrenzen der Elemente berechnet. Dabei geht je nach Gleichung die Pulslänge, die Repetitionszeit, die Gesamtmesszeit  $t_m$ , der thermische bzw. schnelle Neutronenfluss, die Wirkungsquerschnitte für die Einfangsreaktionen mit thermischen bzw. schnellen Neutronen und die Photopeak-Effizienz in die Berechnung mit ein. Im Falle der Verzögerten-Gamma-Aktivierung müssen noch die unterschiedlichen Halbwertszeiten der gebildeten Radionuklide berücksichtigt werden.

Es wurden für unterschiedliche Bestrahlungsbedingungen, die Nachweisgrenzen für ausgewählte Elemente, die in einer Beton-Probe homogen verteilt sind, berechnet. In allen Fällen wird von einer Gesamtmesszeit von 3600 s ausgegangen. In Abbildung 89 sind die Nachweisgrenzen für den Fall einer kurzen Pulslänge von 35  $\mu\text{s}$  und einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  dargestellt. Unter diesen Bedingungen hat der schnelle Neutronenfluss einen Wert von  $18000 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  und der thermische Neutronenfluss von  $1033 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  (siehe Tabelle 42). Für eine Pulslänge von 250  $\mu\text{s}$  und eine Quellstärke von  $5 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  sind die Nachweisgrenzen in Abbildung 90 dargestellt. Der schnelle Neutronenfluss hat in diesem Fall einen Wert von  $112500 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  und der thermische Neutronenfluss von  $6456 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Für den Fall, dass die Elemente sich in der Fassmitte befinden ergeben sich andere Nachweisgrenzen (siehe Abbildung 91). Die Elemente sind in den jeweiligen Intervallen nach steigenden Werten der Nachweisgrenze sortiert. Die Elemente mit den kleineren Werten befinden sich unten bzw. an der Abszisse.

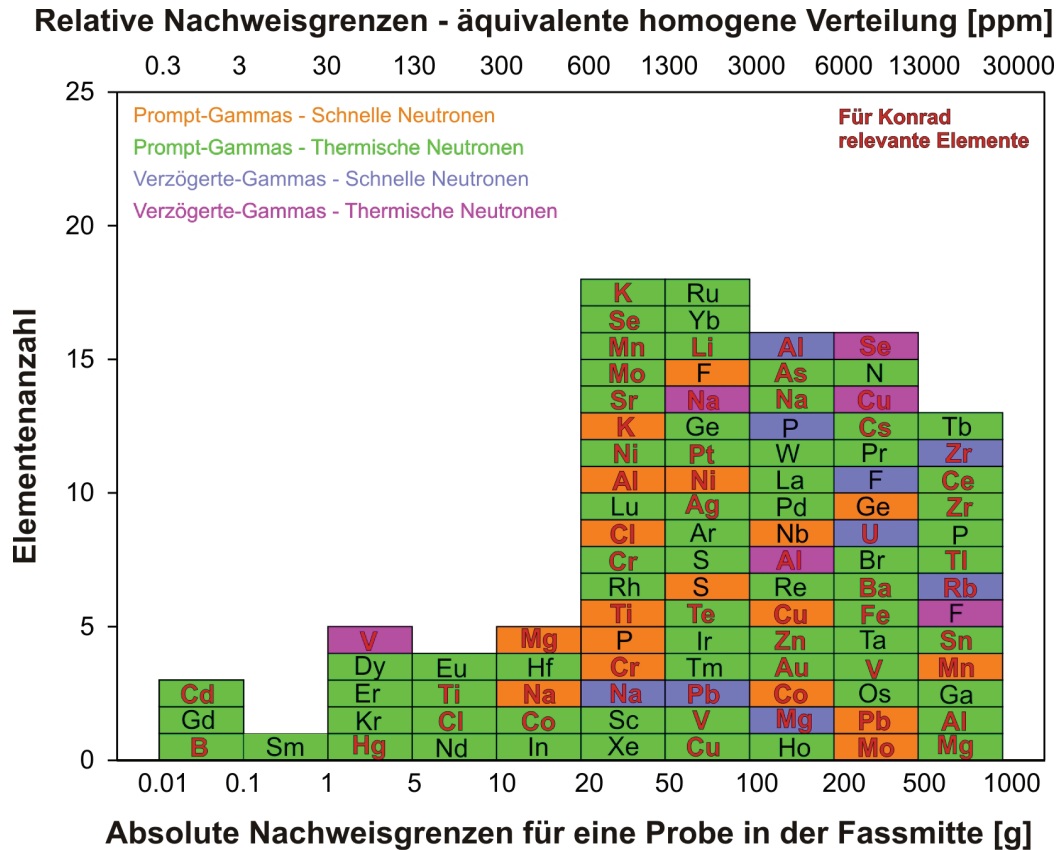
Bei den Berechnungen wurde berücksichtigt, dass für einige Elemente in der Fassmitte andere Gamma-Linien zu niedrigeren Nachweisgrenzen führen. Je nach Intensität und Energie der Gamma-Linien ist die Absorption im Probenkörper stärker oder schwächer, dementsprechend kommen mehr oder weniger Photonen im Detektor an.



**Abbildung 89:** Die Nachweisgrenzen gelten für eine 38 kg Beton-Probe, die bei einer Pulslänge von  $t_p = 35 \mu s$  und einer Quellstärke von  $8 \cdot 10^6 \text{ n} \cdot s^{-1}$  charakterisiert wird. Bei einer Bestrahlungszeit von  $t_b = 3600 \text{ s}$ , ergibt sich für die Messzeit der Prompt-Gammas (thermischen Neutronen)  $t_{m,th} = 3474 \text{ s}$  bzw.  $t_{m,f} = 126 \text{ s}$  (schnellen Neutronen). Für die Neutronenflüsse gilt:  $\phi_{th} = 1033 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot s^{-1}$  und  $\phi_f = 18000 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot s^{-1}$ .







**Abbildung 91:** Die Nachweisgrenzen wurden für eine 38 kg Beton-Probe, die bei einer Pulslänge von  $t_p = 250 \mu s$  und einer Quellstärke von  $5 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot s^{-1}$  charakterisiert wird. Bei einer Bestrahlungszeit von  $t_b = 3600 \text{ s}$ , ergibt sich für die Messzeit der Prompt-Gammas (thermischen Neutronen)  $t_{m,th} = 2700 \text{ s}$  bzw.  $t_{m,f} = 900 \text{ s}$  (schnellen Neutronen). Für die Neutronenflüsse gilt:  $\phi_h = 6456 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot s^{-1}$  und  $\phi_f = 112500 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot s^{-1}$ .

Niedrigere Nachweisgrenzen können erreicht werden, indem die Neutronenquellstärke und bzw. oder die Messzeit erhöht wird:

$$NWG_{neu} = NWG \cdot \frac{1}{\alpha} \cdot \sqrt{\frac{\alpha}{\beta}} \quad \text{mit} \quad \alpha = \frac{S_{N,neu}}{S_N} \quad \text{und} \quad \beta = \frac{t_{m,neu}}{t_m} \quad (12.2)$$

Hierbei ist  $S_N$  die Neutronenquellstärke und  $t_m$  die Messzeit.

Beispielsweise wird bei einer Erhöhung der Quellstärke um den Faktor 100, die Nachweisgrenze um eine Größenordnung gesenkt. Desweiteren können die Nachweisgrenzen von Elementen, die durch schnelle Neutronen aktiviert werden (z. B. Blei), durch eine Erhöhung der Pulslänge verbessert werden.

# Kapitel 13

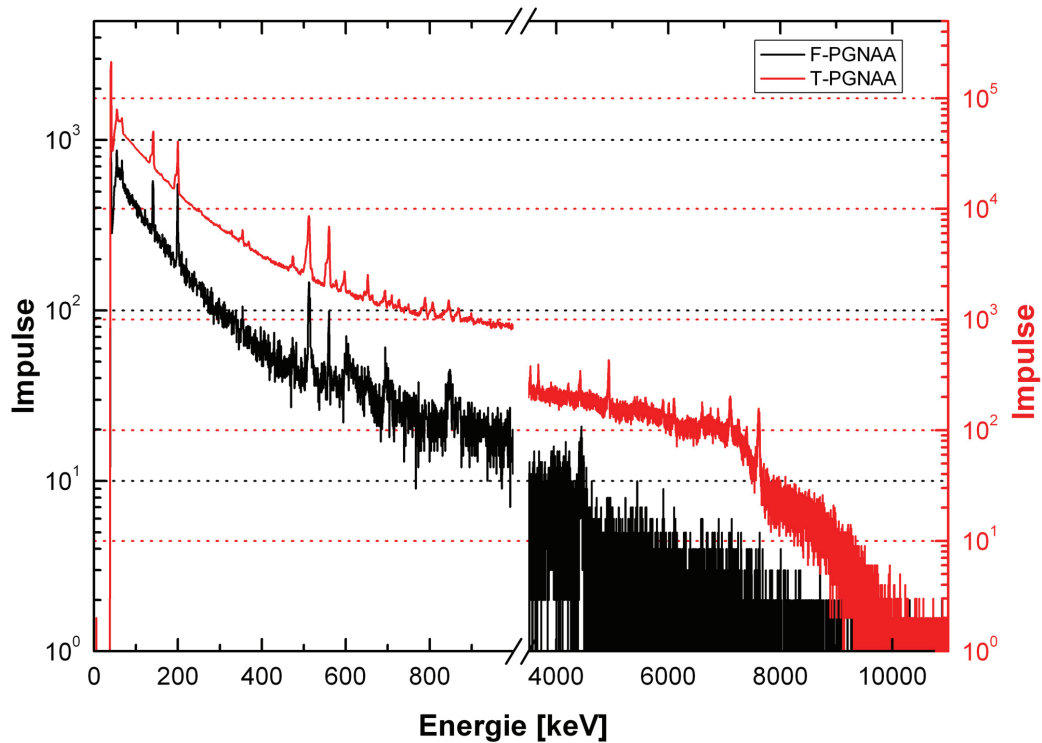
## Ausblick

### Zusammenfassung

Die Untersuchungen mit dem PGNAA-Prototypsystem haben gezeigt, dass es für die weiteren Entwicklungen noch einige Verbesserungsmöglichkeiten im Hinblick auf die quantitative Messung der gesuchten Elemente in unbekannten Proben gibt. Die Messungen der Prompt-Gamma-Spektren während des Neutronenpulses bzw. im CW-Modus können durchgeführt werden, sofern die zyklische Neutronen-Aktivierung dementsprechend optimiert wird und die Abschirmung des Detektors bezgl. der schnellen Neutronen gelöst wird. Für die Messung realer radioaktiver Abfälle ist die Hochskalierung der PGNAA-Anlage auf 200-l-Fässer notwendig.

### 13.1. Zyklische Neutronen-Aktivierung

Es wurden mehrere Versuche unternommen, die Prompt-Gamma-Aktivität während des Neutronenpulses zu messen. Bei minimaler Quellstärke des Neutronengenerators konnten im CW-Modus die Prompt-Gamma-Spektren verschiedener Proben gemessen werden (siehe Abschnitt 7.5.8). Im Pulsmodus werden bei gleicher Quellstärke wie CW-Modus kurzzeitig hohe Neutronen-Peakströme erzeugt, wodurch die Probenaktivität in diesem kurzen Zeitraum sehr hoch ist. Für die Untersuchung der zyklischen Neutronen-Aktivierung wurde eine 18 kg schwere Betonprobe in einem 25-l-Strahlfass über einen Zeitraum von 2330 s im Pulsmodus bestrahlt. Die Repetitionsrate der Neutronenpulse wurde mit 0,2 ms sehr kurz gehalten, dementsprechend kurz war auch die Pulslänge mit 17  $\mu$ s. Die Nuklearelektronik wurde so eingestellt, dass der eine Vielkanalanalysator das Prompt-Gamma-Spektrum zwischen den Pulsen (T-PGNAA) und der Andere während der Pulse (F-PGNAA) gemessen hat. Die reine Messzeit für die T-PGNAA entsprach 920 s und für die F-PGNAA nur 78 s. In Abbildung 92 sind die beiden Spektren in den Energiebereichen bis 1 MeV und von 4 bis 11 MeV dargestellt.



**Abbildung 92:** Prompt-Gamma-Spektren einer 18 kg schweren Beton-Probe mit Spuren von Schwermetallen. Das T-PGNAA-Spektrum wurde zwischen den Neutronenpulsen aufgenommen und das F-PGNAA-Spektrum während der Pulse. Die Probenzusammensetzung ähnelt dem Probenfass Nr. 2, aus diesem Grund wird die Bezeichnung der Gamma-Linien unterlassen.

Als sehr störend machen sich die Prompt-Gamma-Aktivitäten durch die Aktivierung des Germaniums mit schnellen Neutronen bei 596, 692 und 834 keV bemerkbar [Molnár2004, S. 95]. Um die Aktivierung des Germanium-Kristalls mit schnellen Neutronen zu vermeiden, müsste der

Detektor weiter von der Neutronenquelle entfernt werden bzw. es müsste eine geeignete Abschirmung für den Detektor konstruiert werden. Die Versuche im Rahmen dieser Arbeit haben gezeigt, dass eine Neutronenabschirmung auf Basis von schwerem Wasser möglich ist. Allerdings muss der Behälter des schweren Wassers aus einem Material gefertigt werden, das schwer zu aktivieren ist. Ein, aus einem Teflon®-Block gefräster Behälter würde genügen, um die Frontseite des Detektors, über die der überwiegende Teil der schnellen Neutronen auf den HPGe-Kristall trifft, abzuschirmen.

Ein anderes Problem besteht in der relativ hohen Gamma-Aktivität der Probe während des Neutronenpulses. Der verwendete RC-Vorverstärker (DC gekoppelt) des HPGe-Detektors (100 %) konnte die hohe Signalrate nicht verarbeiten. Die Energie, die der Vorverstärker pro Sekunde verarbeiten kann, hängt von dem Widerstand des RC-Kreises ab (siehe Abschnitt 7.5.1). Eine wesentlich größere Anzahl an Ereignissen kann mit einem FET-Vorverstärker gemessen werden. Aus diesem Grund wurde nach Abschluss der Untersuchungen, der eingebaute Vorverstärker (Modell 2002CSL) vom Hersteller Canberra gegen einen neuen FET-Vorverstärker (Modell 2101N/SL) ausgetauscht. Für die kommenden Untersuchungen, mit dem neuen Vorverstärker, wird erwartet, dass die Prompt-Gamma-Aktivität während der Neutronenpulse gemessen werden kann.

## 13.2. Quantitativer Nachweis - Inhomogene großvolumige Proben

Die Untersuchungen der inhomogenen Probenfässer und der Einzelproben haben gezeigt, dass die Selbstabsorption der Neutronen- und Gamma-Strahlung, den quantitativen Nachweis der Elemente erschweren. Bei der Charakterisierung des betonierten 50-l-Stahlfasses mit dem Cadmiumblech, wurden nur etwa 8,4 % der Cadmium-Probenmasse mit den thermischen Neutronen aktiviert, da die mittlere freie Weglänge von thermischen Neutronen mit 0,009 cm sehr kurz ist. Um die Selbstabsorption in der Auswertung des Gamma-Spektrums einer unbekannten Probe zu berücksichtigen, ist die Information über die Dichteverteilung in der Probe notwendig. Es gibt verschiedene radiometrische Verfahren, die diese Informationen liefern können [Eifler1995]. Zum einen gibt es die digitale Radiographie und zum anderen die Tomographie. Bei der aktiven Radiographie wird die Probe entweder mit Neutronen- und Gamma-Strahlung durchleuchtet und sein Schattenbild sichtbar gemacht. Das Prinzip ist identisch mit der in der medizinischen Diagnostik und in der Materialprüfung eingesetzten Röntgenbildaufnahmetechnik. Es befinden sich derzeit Systeme für die Neutronen-Radiographie in Entwicklung, die schnelle Neutronen eines 14-MeV-Neutronengenerators als Strahlsonde nutzen [Lehmann2005].

Die Tomographie ist ebenfalls ein bildgebendes Verfahren, sie besitzt aber im Vergleich zur digitalen Radiographie einen höheren Informationsgehalt. Bei der aktiven Tomographie (TCT)<sup>51</sup> werden Schnittbilder der Probe erzeugt. Dazu wird die Probe mit einer geeigneten Strahlenquelle durchleuchtet. Im Forschungszentrum Jülich (IEF-6) wurde eine Tomographie-Anlage entwickelt, die sowohl mit einer starken externen Quelle (<sup>60</sup>Co), als auch über die passive Messung der Eigenstrahlung von radioaktiven Abfällen (ECT)<sup>52</sup>, die Dichtematrix einer unbekannten Probe bestimmen kann. Leider konnte die Tomographie-Anlage im Rahmen dieser Arbeit nicht genutzt werden. Ein Nachteil der entwickelten Anlage ist die lange Messzeit. Die Charakterisierung einer Probe (200 l) dauert bis zu 24 h, weil die Auflösung der Tomographie-Anlage mit 5 x 5 mm<sup>2</sup> relativ hoch ist.

---

<sup>51</sup> TCT = Transmission-Computer-Tomographie

<sup>52</sup> ECT = Emissions-Computer-Tomographie

Ein weiteres Ergebnis der Untersuchungen inhomogener Proben im Rahmen dieser Arbeit ist, dass für eine optimale Charakterisierung inhomogener Proben, eine Rotation des Stahlfasses notwendig ist. Nur so kann erreicht werden, dass die nachteiligen Einflüsse der Selbstabsorption der Photonen in der Probe minimiert werden.

### 13.3. Hochskalierung des Systems für die Charakterisierung von 200-l-Fässern

Im Rahmen dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass der qualitative Nachweis ausgewählter Elemente in 25-l-Probenfässer mit dem PGNAA-Prototypsystem möglich ist. Desweiteren wurden, auf Basis der System-Parameter, die Nachweisgrenzen der relevanten Elemente für das Endlager Konrad berechnet. Da aber in Konrad Abfallgebinde<sup>53</sup> nur zugelassene Container eingelagert werden dürfen, sollten die 200-l-Abfallfässer vor der Einbringung in die Container qualifiziert, d. h. untersucht werden. Eine PGNAA-Anlage muss auf Proben dieser 200-l-Fassgröße dann hochskaliert werden. Dementsprechend muss die Graphitkammer vergrößert werden, wodurch sich einige System-Parameter wie z. B. die Detektor-Effizienz ändern. Für eine unkollimierte Messung des Probenfasses muss der Abstand von der Probenmitte bis zum Detektor-Kristall auf ca. 100 cm vergrößert werden, wodurch die Detektor-Effizienz für Messung der Gamma-Strahlung aus dem 200 l betonierten Stahlfass schon alleine durch das Quadrat-Abstands-Gesetz verringern wird. Dieser Nachteil kann teilweise dadurch kompensiert werden, dass die Quellstärke des Neutronengenerators erhöht wird. Wahrscheinlich werden sogar Messungen im CW-Modus möglich sein. Insgesamt ist davon auszugehen, dass die gleichen Nachweisgrenzen wie im Rahmen dieser Arbeit erreicht werden können.

---

<sup>53</sup> Als Abfallgebinde werden die konditionierten Konrad-Container bezeichnet, in denen 200-l-Fässer einbetoniert werden.

## 14 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde die Entwicklung eines PGNAA-Prototypsystems für die Elementcharakterisierung in großvolumigen Proben beschrieben. Das System besteht aus einer großvolumigen Graphitkammer als Messobjektkammer, einem Neutronengenerator und einem HPGe-Spektrometer als Detektor. Der Betrieb dieser Anlage, die sowohl Neutronen als auch hochenergetische Photonen emittiert, ist an spezielle Bedingungen, die sich aus der Strahlenschutzverordnung ableiten, geknüpft. Um die Äquivalentdosen im Strahlungsumfeld der PGNAA-Anlage zu ermitteln, wurden mithilfe eines Computer-Codes (MCNP) Rechnungen zum Neutronen- und Photonentransport durchgeführt. Die Ergebnisse der Simulationen wurden mit den Werten der Ortsdosisleistung verglichen, die der TÜV Rheinland experimentell im Rahmen des Genehmigungsverfahrens bestimmt hat (Kapitel 7).

Die Einstellungen der einzelnen technischen Komponenten wurden aufeinander abgestimmt. Besonders wichtig war es, die Quellstärke des Neutronengenerators und die Zeitkonstante (*Shaping Time*) der Nuklearelektronik im Hinblick auf die Messung der Prompt-Gamma-Spektren zu optimieren. Im Dauerbetrieb des Neutronengenerators war es kaum möglich ein angemessenes Spektrum zu messen. Erst durch geeignete Einstellung im Pulsmodus konnten die Prompt-Gamma-Spektren der verschiedenen Proben aufgenommen werden. Eine weitere Herausforderung stellte die Minimierung der Aktivierung des Germanium-Kristalls (HPGe-Detektor) durch die Neutronen dar. Durch die Germanium-Aktivierung wird unmittelbar der Untergrund im Prompt-Gamma-Spektrum erhöht. Über einen längeren Bestrahlungszeitraum verschlechtert sich zudem die Auflösung des Detektors, weil die Kristallstruktur durch die einfallenden Neutronen geschädigt wird. Zur Vermeidung wurde eine spezielle Abschirmung für thermische Neutronen entwickelt und gebaut (Kapitel 7). Dadurch konnte die Aktivierung des Detektor-Kristalls durch thermische Neutronen, um mehr als vier Größenordnungen gemindert werden. Für die Abschirmung schneller Neutronen wurden in einer MCNP-Studie mehrere Lösungsmöglichkeiten untersucht. Eine experimentelle Überprüfung der Ergebnisse mittels einer Abschirmung mit schwerem Wasser war erfolgreich, brachte aber andere Probleme mit sich und wurde deswegen nicht standardmäßig eingesetzt.

Zu den wichtigsten Systemparametern zählt die Photopeak-Effizienz. Sie hängt sowohl von der Bauart des Detektor-Kristalls (intrinsisch), als auch von der Beschaffenheit der Messkammer und Proben (Geometrie) ab. Die Photopeak-Effizienz wurde experimentell, durch Messung und Auswertung von Punktquellen bzw. Prompt-Gamma-Spektren eines leeren Stahlfasses bestimmt. Desweiteren wurden Computer-Simulationen durchgeführt, um die Photopeak-Effizienz für spezielle Messgeometrien, wie z. B. einem 25-l-Stahlfass gefüllt mit Beton, zu bestimmen (Kapitel 8).

Um die Nachweisempfindlichkeit des PGNAA-Prototypsystems zu bestimmen, wurden homogene und inhomogene Probenfässer, mit verschiedenen Zusammensetzungen, hergestellt. Besonderer Wert wurde auf den Nachweis von chemotoxischen Stoffen, wie Cadmium, Quecksilber und Blei gelegt. Durch Vergleichsmessungen mit einem Massenspektrometer (ICP-MS) und einem PGNAA-System in Budapest (Ungarn) konnten die Ergebnisse mit dem PGNAA-Prototypsystem verifiziert werden (Kapitel 9).

Durch die Aktivierung verschiedener Einzelproben wurde die Selbstabsorption der Neutronen und Photonen in den Proben untersucht. Es hat sich gezeigt, dass bei der Quantifizierung unbekannter inhomogenen Proben die mittlere Reichweite der Neutronen bzw. Photonen in der Probe eine erhebliche Rolle bei der Ermittlung der Nachweisgrenze spielt (Kapitel 10). Eine 30 g schwere Gadoliniumnitrat-Probe wurde aufgrund des sehr hohen Einfangsquerschnitts für thermische Neutronen von Gadolinium nur zu 1,4 % aktiviert.

Die Erkenntnisse, die aus diesen Untersuchungen gewonnen wurden, können für die Weiterentwicklung des PGNA-Systems genutzt werden. Besonders im Bezug auf die Quantifizierung unbekannter Proben müssen noch weitere Studien durchgeführt werden. Ein Ergebnis der vorliegenden Arbeit ist in diesem Zusammenhang, dass inhomogene Proben für die Charakterisierung gedreht werden müssen, um die Effekte durch die Selbstabsorption der Neutronen und Photonen in der Probe zu minimieren.

Abschließend wurden die Nachweisgrenzen ausgewählter Elemente für verschiedene Bestrahlungs- und Messbedingungen, basierend auf der zyklischen Neutronen-Aktivierung, bestimmt (Kapitel 12). Die für die Endlagerung relevanten Elemente wurden dabei besonders berücksichtigt.

Mit dieser Arbeit wurde erfolgreich ein Weg aufgezeigt, mit Hilfe dessen es möglich sein sollte, die für die Chemotoxizität relevanten inaktiven Elemente in Abfallgebinden nachzuweisen und somit ein Messsystem für die Quantifizierung endlagerfähiger radioaktiver Abfallgebinde vorweisen zu können.

## Anhang

### A1 Herleitung für die zyklische Neutronen-Aktivierung

#### Verzögerte-Gamma-Aktivierung mit schnellen Neutronen – Aktivität $A_{d,t}$ :

Die Aktivität stellt sich nach dem ersten Puls wie folgt dar:

$$A_1 = N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_p}\right) \cdot e^{-\lambda_t \cdot t_w} \quad (\text{A1.1})$$

Hierbei ist  $N$  die Anzahl der Atomkerne,  $\sigma_f^z$  der Wirkungsquerschnitt für die Photonenproduktion aus den Kernreaktionen mit den schnellen Neutronen,  $\phi_f$  der schnelle Neutronenfluss,  $\lambda_t$  die Zerfallskonstante für das jeweilige Nuklid,  $t_p$  die Pulslänge und  $t_w$  die Wartezeit, ab der die Aktivität gemessen wird. Der Wirkungsquerschnitt für die Photonenproduktion ( $\sigma_f^z = \sigma_c \cdot I_\gamma \cdot h_z$ ) ist das Produkt aus dem Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang  $\sigma_c$ , der Gamma-Emissionswahrscheinlichkeit  $I_\gamma$  und der Isotopenhäufigkeit  $h_z$ .

Für die Detektor-Response ergibt sich dadurch nach der ersten Zählperiode  $T$ :

$$P_1 = A_1 \cdot \varepsilon \cdot \int_0^{t_c} e^{-\lambda_t \cdot t} dt = \frac{N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \varepsilon}{\lambda_t} \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_p}\right) \cdot \left(e^{-\lambda_t \cdot t_w}\right) \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_c}\right) \quad (\text{A1.2})$$

In der zweiten Periode muss die noch nicht zerfallene Aktivität der ersten Periode berücksichtigt werden:

$$A_2 = N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_p}\right) \cdot \left(e^{-\lambda_t \cdot t_w}\right) \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_c}\right) \cdot \left(1 + e^{-\lambda_t \cdot T}\right) \quad (\text{A1.3})$$

Daraus ergibt sich für die Detektor-Response nach der zweiten Periode:

$$P_2 = A_2 \cdot \varepsilon \cdot \int_0^{t_c} e^{-\lambda_t \cdot t} dt = \frac{N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \varepsilon}{\lambda_t} \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_p}\right) \cdot \left(e^{-\lambda_t \cdot t_w}\right) \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_c}\right) \cdot \left(1 + e^{-\lambda_t \cdot T}\right) \quad (\text{A1.4})$$

Wird nach diesem Schema die Anzahl der Impulse nach  $n$  Pulsen betrachtet und dabei immer die Aktivität der vorhergehenden Perioden berücksichtigt ergibt sich folgende Gleichung:

$$P_n = \frac{N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \varepsilon}{\lambda_t} \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_p}\right) \cdot \left(e^{-\lambda_t \cdot t_w}\right) \cdot \left(1 - e^{-\lambda_t \cdot t_c}\right) \cdot \left(1 + e^{-\lambda_t \cdot T} + e^{-2 \cdot \lambda_t \cdot T} + \dots + e^{-(n-1) \cdot \lambda_t \cdot T}\right) \quad (\text{A1.5})$$

Der letzte Term stellt eine Reihenentwicklung dar und lässt sich zusammenfassen zu:

$$1 + e^{-\lambda_t \cdot T} + e^{-2 \cdot \lambda_t \cdot T} + \dots + e^{-(n-1) \cdot \lambda_t \cdot T} = \frac{1 - e^{-n \cdot \lambda_t \cdot T}}{1 - e^{-\lambda_t \cdot T}} \quad (\text{A1.6})$$

Dadurch vereinfacht sich die Detektor-Response nach  $n$  Pulsen zu:



$$P_n = \frac{N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \varepsilon}{\lambda_i} \cdot (1 - e^{-\lambda_i t_p}) \cdot (e^{-\lambda_i t_w}) \cdot (1 - e^{-\lambda_i t_c}) \cdot \left( \frac{1 - e^{-n \lambda_i T}}{1 - e^{-\lambda_i T}} \right) \quad (\text{A1.7})$$

Um die kumulierte Detektor-Response nach  $n$  Messperioden der Länge  $T$  zu erhalten werden die Zählraten der Einzelperioden aufaddiert:

$$P_{nT} = \sum_{n'=1}^n D_{n'} = \frac{N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \varepsilon}{\lambda_i} \cdot (1 - e^{-\lambda_i t_p}) \cdot (e^{-\lambda_i t_w}) \cdot (1 - e^{-\lambda_i t_c}) \cdot \left( \frac{1}{1 - e^{-\lambda_i T}} \right) \cdot \sum_{n'=1}^n (1 - e^{-n' \lambda_i T}) \quad (\text{A1.8})$$

Der Summationsterm kann entwickelt werden und vereinfacht sich zu folgender Gleichung:

$$\sum_{n'=1}^n (1 - e^{-n' \lambda_i T}) = n - \sum_{n'=1}^n e^{-n' \lambda_i T} = n - \frac{e^{-\lambda_i T} \cdot (1 - e^{-n \lambda_i T})}{(1 - e^{-\lambda_i T})} \quad (\text{A1.9})$$

Die Gleichung für die kumulierten Impulse der Verzögerte-Gamma-Aktivierung durch schnelle Neutronen wird durch den entwickelten Summationsterm zu:

$$P_{nT} = P_{d,f} = \frac{N \cdot \sigma_f^z \cdot \phi_f \cdot \varepsilon}{\lambda_i} \cdot (1 - e^{-\lambda_i t_p}) \cdot (e^{-\lambda_i t_w}) \cdot (1 - e^{-\lambda_i t_c}) \cdot \left[ \frac{n}{1 - e^{-\lambda_i T}} - \frac{e^{-\lambda_i T} \cdot (1 - e^{-n \lambda_i T})}{(1 - e^{-\lambda_i T})^2} \right] \quad (\text{A1.10})$$

#### Verzögerte-Gamma-Aktivierung mit thermischen Neutronen – Aktivität $A_{d,th}$ :

Die Verzögerte-Gamma-Aktivität mit thermischen Neutronen unterscheidet sich von der Aktivität mit schnellen Neutronen dadurch, dass sich während des Zerfalls der Verzögerten-Gamma-Aktivität durch das immer noch vorhandene thermische Neutronenfeld eine erneute Aktivierung stattfindet. Dadurch entsteht eine kontinuierliche Aktivierung:

$$A_i = N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot (1 - e^{-\lambda_i (t_p + t_w)}) \quad (\text{A1.11})$$

Für die Detektor-Response während der ersten Messperiode  $T$  ergibt sich folgende Gleichung:

$$P_1 = A_i \cdot \varepsilon \cdot \int_0^{t_c} e^{-\lambda_i t} dt + N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \int_0^{t_c} (1 - e^{-\lambda_i t}) dt \quad (\text{A1.12})$$

Der zweite Term im Integral kommt dadurch zustande, dass während der Messung immer noch eine Aktivierung stattfindet. Anhand einer partiellen Integration kann dieser Term entwickelt werden:

$$\begin{aligned} \int_0^{t_c} (1 - e^{-\lambda_i t}) dt &= \left[ t \cdot (1 - e^{-\lambda_i t}) \right]_0^{t_c} - \lambda_i \cdot \left[ \frac{e^{-\lambda_i t}}{\lambda_i^2} (-\lambda_i \cdot t) - 1 \right]_0^{t_c} \\ &= t_c - \frac{1 - e^{-\lambda_i t_c}}{\lambda_i} = t_c \cdot \left( 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_i t_c}}{\lambda_i \cdot t_c} \right) \end{aligned} \quad (\text{A1.13})$$

Für die Detektor-Response der ersten Messperiode gilt:

$$P_1 = N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \varepsilon \cdot \left[ \left( 1 - e^{-\lambda_t(t_p+t_w)} \right) \cdot \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t} + t_c \left( 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t \cdot t_c} \right) \right] \quad (A1.14)$$

Für die Aktivität nur in der zweiten Periode wird die Zeit  $T$  dazu addiert:

$$A_2 = N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \left( 1 - e^{-\lambda_t(T+t_p+t_w)} \right) \quad (A1.15)$$

Die Detektor-Response ändert sich dementsprechend zu:

$$P_2 = N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \varepsilon \cdot \left[ \left( 1 - e^{-\lambda_t(T+t_p+t_w)} \right) \cdot \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t} + t_c \left( 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t \cdot t_c} \right) \right] \quad (A1.16)$$

Für die folgenden Perioden setzt sich die Berechnung in ähnlicher Weise fort:

$$P_n = N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \varepsilon \cdot \left[ \left( 1 - e^{-\lambda_t((n-1)T+t_p+t_w)} \right) \cdot \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t} + t_c \left( 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t \cdot t_c} \right) \right] \quad (A1.17)$$

Werden die Zählraten der Einzelperioden aufaddiert, um die kumulierte Detektor-Response zu bestimmen, ergibt sich die folgende Gleichung:

$$\begin{aligned} P_{nT} &= P_1 + P_2 + \dots + P_n = \\ &= N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \varepsilon \cdot \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t} \cdot \left[ \left( 1 - e^{-\lambda_t(t_p+t_w)} \right) + \left( 1 - e^{-\lambda_t(T+t_p+t_w)} \right) + \dots + \left( 1 - e^{-\lambda_t((n-1)T+t_p+t_w)} \right) \right] + n \cdot t_c \left( 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t \cdot t_c} \right) \right] \quad (A1.18) \\ &= N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \varepsilon \cdot \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t} \cdot \left[ n - e^{-\lambda_t(t_p+t_w)} - e^{-\lambda_t T} e^{-\lambda_t(t_p+t_w)} - \dots - e^{-\lambda_t(n-1)T} e^{-\lambda_t(t_p+t_w)} \right] + n \cdot t_c \left( 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t \cdot t_c} \right) \right] \end{aligned}$$

Die Entwicklung der Summe ergibt:

$$1 + e^{-\lambda_t T} + e^{-\lambda_t 2T} + \dots + e^{-\lambda_t(n-1)T} = \frac{1 - e^{-\lambda_t nT}}{1 - e^{-\lambda_t T}} \quad (A1.19)$$

Dadurch vereinfacht sich Gleichung A1.18 zu:

$$P_{nT} = P_{d,th} = N \cdot \sigma_{th}^z \cdot \phi_{th} \cdot \varepsilon \cdot \left[ \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t} \cdot \left( n - e^{-\lambda_t(t_p+t_w)} \cdot \frac{1 - e^{-\lambda_t nT}}{1 - e^{-\lambda_t T}} \right) + n \cdot t_c \left( 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t \cdot t_c} \right) \right] \quad (A1.20)$$

## A2 MCNP-Input-Datei für die PGNA-Anlage

```

c =====CELLS=====
1      1      -1.6      -403 303 -308                      $drum 1
2      3      -7.872    -404 3021 -309 (403:-303:308)        $iron drum
3      8      -0.3      -402 201 -202                      $neutron generator
4      5      -0.001225 106 -109 201 -202 305 -306 #3        $neutron generator cover
5      4      -5.32     -401 102 -103                      $detector
6      7      -1.6      1031 -104 204 -205 305 -307          $Lithium Shield
7      8      -0.3      -401 1012 -1031 #5                  $detector alu shield
8      8      -2.70     -405 1012 -1031 #5 #7                $Alu shield
9      6      -1.8      -406 1011 -1031 #5 #7 #8            $LiF shield
10     5      -0.001225 -407 1011 -1031 #5 #7 #8 #9          $boron shield
11     5      -0.001225 -408 1011 -1031 #5 #7 #8 #9 #10      $LiF shield
12     5      -0.001225 100 -1031 204 -205 305 -307 #5 #7 #8 #9 #10 #11 $detector cover
13     2      -1.59     101 -111 201 -202 301 -311 #3 #4      $neutron generator side
14     2      -1.59     101 -111 202 -207 301 -302          $chamber ground
15     2      -1.59     101 -111 207 -208 301 -311          $opposite neutron generator
16     2      -1.59     101 -104 202 -207 302 -310 #5 #7 #8 #6 #9 #10 #11 #12 $detector side
17     2      -1.59     110 -111 202 -207 302 -310          $opposite detector
18     2      -1.59     104 -105 202 -203 302 -307          $block 1
19     2      -1.59     104 -105 206 -207 302 -307          $block 2
20     2      -1.59     101 -111 202 -207 310 -311          $chamber covering
21     2      -1.59     100 -101 202 -207 301 -310 #8 #9 #7 #10 #11 #12 $detector graphit shield
22     5      -0.001225 100 -101 201 -202 301 -310          $air
23     5      -0.001225 100 -101 207 -208 301 -310          $air
24     5      -0.001225 100 -101 201 -208 310 -311          $air
25     5      -0.001225 104 -110 202 -207 302 -310 #1 #2 #18 #19 $air
26     0      -100:111:-201:208:-301:311                    $outerworld

c =====SURFACES=====
100    px      -65
1011   px      -63
1012   px      -62.5
101    px      -50
102    px      -43
103    px      -35
1031   px      -30.4
104    px      -30
105    px      -22
106    px      -4
107    px      -2.5
108    px      2.5
109    px      4
110    px      20.1
111    px      50
201    py      -70
202    py      -20
203    py      -9
204    py      -4.4
205    py      4.4
206    py      9
207    py      20
208    py      60
301    pz      -29
302    pz      -21
3021   pz      -11

```

```

303 pz -10.85
304 pz -8
305 pz -3
306 pz 5
307 pz 6
308 pz 10.85
309 pz 11
310 pz 31
311 pz 51
401 c/x 0 1.5 4.0
402 cy 3.8
403 cz 19.85
404 cz 20
405 c/x 0 1.5 4.1
406 c/x 0 1.5 4.5
407 c/x 0 1.5 4.6
408 c/x 0 1.5 4.7

```

```

c =====MATERIALS=====
m1 1001.00c -0.0041 $concrete density 1.60
    8016.00c -0.516354
    12024.00c -0.0057
    13027.00c -0.0085
    14028.00c -0.3700
    17035.00c -0.000097
    19039.00c -0.0007
    20040.00c -0.0890
    22048.00c -0.00075
    25055.00c -0.000294
    26056.00c -0.0045
    62152.00c -0.000001
    63151.00c -0.000003
    64155.00c -0.000001
m2 6000.00c -1 $graphit density 1.59
m3 6000.00c -0.0006 $carbon steel 7.872
    25055.00c -0.0035
    26054.00c -0.056755
    26056.00c -0.91493
    26057.00c -0.021323
    26058.00c -0.002893
m4 32070.11c -0.2123 $Germanium 5.32
    32072.11c -0.2766
    32073.11c -0.0773
    32074.11c -0.3594
    32076.11c -0.0744
m5 7014.00c -0.755636 $air (US S. Atm at sea level) 0.001225
    8016.00c -0.231475
    18040.00c -0.012889
m6 3006.00c 9 $Lithiumfluorid 1.8
    3007.00c 1
    9019.00c 10
m7 3006.00c -0.01419 $Lithimcarbonat 1.2
    3007.00c -0.17501
    6000.00c -0.16220
    8016.00c -0.64860
m8 13027.00c -1 $Aluminium mit sehr geringer Dichte 0.3
mode n p
imp:n 1 24r 0 $ 1, ... 26

```

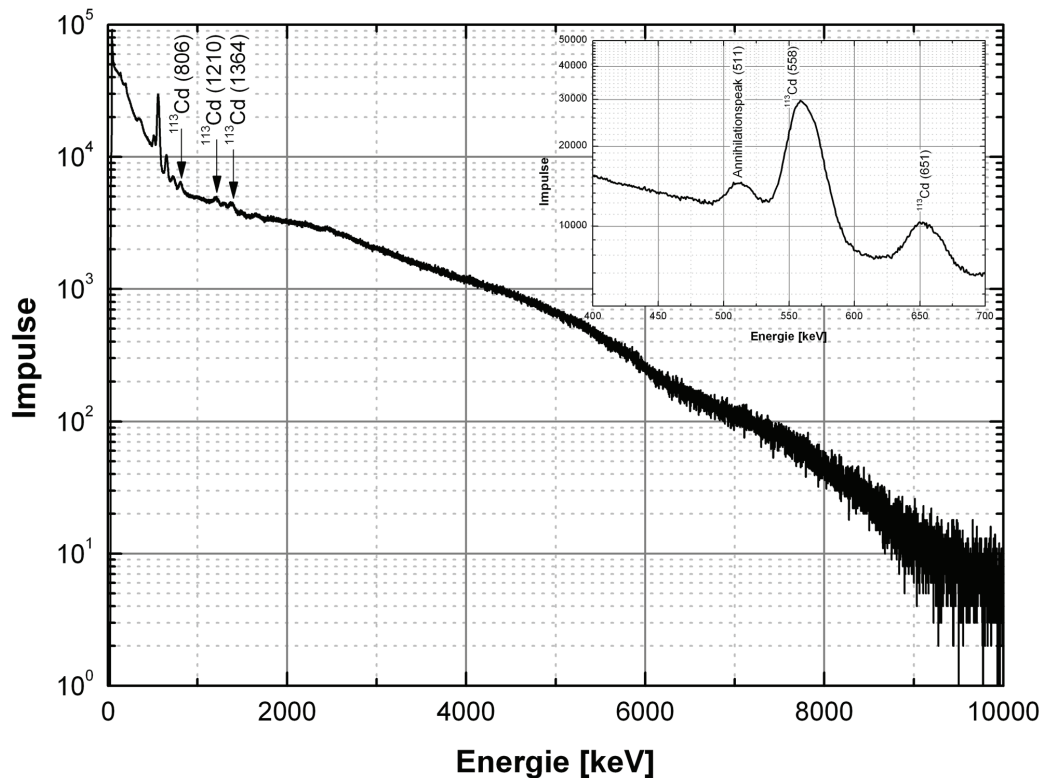
```

imp:p      1 24r 0 $ 1, ... 26
c =====TALLIES=====
c NEUTRONEN
c Neutronenkonzentration im Fass
e14 0.0 1e-11 2e-11 1e-8 1e-7 1e-6 1e-5 1e-4 1e-3 1e-2 1e-1 1 3 5 7 9 11 14.1
f14:n 1
sd14 26861.52
c Thermischer Neutronenfluss an der Fassoberfläche - Manteloberfläche
e12 0.0 1e-11 2e-11 10000I 2e-7
f12:n 404
fs12 -302 309 T
sd12 1 1 2726.90 1
c Thermischer Neutronenfluss an der Fassoberfläche - Deckel
e22 0.0 1e-11 2e-11 10000I 2e-7
f22:n 309
fs22 404 T
sd22 1 1256.64 1
c Thermischer Neutronenfluss an der Fassoberfläche - Boden
e32 0.0 1e-11 2e-11 10000I 2e-7
f32:n 302
fs32 404 T
sd32 1 1256.64 1
c Neutronenkonzentration im HPGe
e24 0.0 1e-11 2e-11 1e-8 1e-7 1e-6 1e-5 1e-4 1e-3 1e-2 1e-1 1 2 5 7 9 11 14.1
f24:n 5
sd24 402.12
c PHOTONEN
c Photonenkonzentration im Detektorkristall
e34 0.0 1e-11 2e-11 10000I 10
f34:p 5
sd34 402.12
e16 0.0 1e-11 2e-11 10000I 10
f16:p 5
sd16 402.12
c Photonendeposition im Detektorkristall
e18 0.0 1e-11 2e-11 10000I 10
f18:p 5
e28 0.0 1e-11 2e-11 10000I 10
f28:p 5
ft28 geb 0.0007543 0.0009905 1.31927          $Coefficients for 100% HPGe
c MESH
FMESH44:n GEOM=xyz ORIGIN=-65 -70 -29
      IMESH=50 IINTS=50
      JMESH=60 JINTS=65
      KMESH=51 KINTS=80
      EMESH= 2e-10 1e-8 1e-7 1.0 2.0 5.0 7.0 14.1 EINTS=1 1 1 1 1 1 1
      FACTOR=8E6
      OUT=ij
c =====KCODE=====
SDEF ERG=14.1 POS=0 -25 0 RAD=d1 PAR=1
c -- set radius and axial limits for the source cylinder
si1 0 2.8
sp1 -21 1
lost 1000000 20
nps 1e9
print

```

### A3 Das Prompt-Gamma-Spektrum einer sehr großen Cadmiummenge

Für die Neutronenabschirmung des Detektors wurden verschiedene Materialien auf ihre Tauglichkeit hin untersucht. In erster Linie kommen starke Neutronenabsorber infrage. Hierzu zählt Cadmium mit seinem Isotop  $^{113}\text{Cd}$ , das einen Einfangsquerschnitt von 20600 b für thermische Neutronen hat. In einem Experiment wurde ein 39,5 cm langes und 0,3 mm dickes Cadmiumblech über die Aluminiumkappe des Detektors geschoben. Über einen Zeitraum von 1429 s wurde die leere Graphitkammer im Pulsmodus bei einer Quellstärke von  $1,3 \cdot 10^7 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$  untersucht. Bei einer Repetitionszeit von 1 ms und einer Pulslänge von 35  $\mu\text{s}$  wurde die Probe 50 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt, das entspricht  $1,4 \cdot 10^6$  Pulsen. Über eine Messzeit von 920 s wurde das Prompt-Gamma-Spektrum des Cadmiumblechs aufgezeichnet. In Abbildung 93 ist das Spektrum bis 10 MeV dargestellt. Die Impulsrate der Gamma-Linie bei 558 keV lag bei 662 Impulsen pro Sekunde.



**Abbildung 93:** Prompt-Gamma-Spektrum der leeren Graphitkammer und dem Cadmiumblech, als Neutronenabsorber vor dem HPGe-Detektor.

Im Wesentlichen sind in dem Gamma-Spektrum die Haupt-Gamma-Linien von Cadmium zu sehen. Durch eine Vielzahl anderer schwacher Gamma-Linien bis 9 MeV wird der Untergrund des Spektrums stark erhöht. Mit dieser Neutronenabschirmung ist es nicht möglich, eine unbekannte Probe zu charakterisieren.

## A4 Elementanalyse des ${}^6\text{Li}$ -Metalls aus Oak Ridge

Alle Experimente und Simulationen haben gezeigt, dass eine Abschirmung der thermischen Neutronen am besten mit einem Material aus  ${}^6\text{Li}$  erreicht werden kann. Die Beschaffung von reinem  ${}^6\text{Li}$  ist sehr schwierig, weil der Handel damit restriktiv ist. Es konnte 1 kg reines  ${}^6\text{Li}$ -Metall über das „Nationale Forschungszentrum in Oak Ridge“ (USA) beschafft werden. In Tabelle 46 ist die Elementzusammensetzung des Metalls dargestellt, das laut Isotopenanalyse (Oak Ridge) einen Anteil an  ${}^6\text{Li}$  von 95,58 Atom-% bzw. von 94,88 Gew.-% hat.

**Tabelle 46:** Elementanalyse des  ${}^6\text{Li}$ -Metalls.

Element	Menge [ppm]	Element	Menge [ppm]	Element	Menge [ppm]
Al	< 30	Hf	< 0,1	Ru	< 0,1
Ag	< 0,1	Hg	< 1	S	< 35
As	< 1	In	< 1	Sb	0,61
Au	< 0,1	Ir	< 0,1	Sc	< 1
Ba	< 1	K	173,9	Si	136,8
Be	< 3	Lu	< 0,1	Sn	1,1
Bi	< 0,3	Mg	114,9	Sr	2,2
Ca	1236	Mn	1,0	Ta	< 0,1
Cd	< 0,3	Mo	< 1,0	Th	< 0,1
Ce	< 0,1	Na	116,1	Ti	< 3
Co	< 0,1	Nb	< 1,0	Tl	0,88
Cr	< 3	Ni	16,2	Tm	< 0,1
Cs	< 1	P	< 30	V	< 3
Cu	20,2	Pb	< 3	W	0,88
Fe	24,4	Pd	< 0,1	Y	< 0,1
Ga	< 0,3	Rb	< 0,1	Zn	32,5
Ge	< 0,5	Rh	< 0,1	Zr	< 3

## A5 Analyse des schweren Wassers

Die Analyse des schweren Wassers wurde durch Mitarbeiter der Zentralabteilung Forschungsreaktoren (ZFR) durchgeführt. Es wurden insgesamt 4,98 kg  $\text{D}_2\text{O}$  in einen speziell für diesen Zweck hergestellten hohlwandigen Behälter gefüllt. Die durchgeführte Analyse im (ZFR) hat keine Radioisotope außer Tritium in dem Wasser identifiziert. In Tabelle 47 sind die Ergebnisse der Analyse dargestellt.

**Tabelle 47:** Analyse der 4,98-kg-D<sub>2</sub>O, das freundlicherweise vom ZFR für Zeitraum der Experimente zur Verfügung gestellt wurde.

pH - Wert		6,0
pd - Wert <sup>54</sup>	[bar·µm]	6,4
Elektrische Leitfähigkeit	[mS·m <sup>-1</sup> ]	0,99
Trübung <sup>55</sup>	[TE·F <sup>-1</sup> ]	0,82
β- bzw. γ-Aktivität	[MBq·l <sup>-1</sup> ]	< 0,0001
Chlorid	[mg·l <sup>-1</sup> ]	0,27
Nitrat	[mg·l <sup>-1</sup> ]	0,24
Sulfat	[mg·l <sup>-1</sup> ]	1,03
D <sub>2</sub> O Gehalt	[%]	99,76
Tritium Aktivität	[MBq·l <sup>-1</sup> ]	4,15

Das schwere Wasser wurde nach Abschluss aller Experimente wieder an das ZFR zurückgegeben.

## A6 Aktivitäten der verwendeten Standard-Punktquellen

Die Aktivitäten der Punktquellen, zum Zeitpunkt der Messungen im August und September 2008, wurden unter Berücksichtigung des Zerfallsgesetzes nach den Angaben des Herstellers berechnet.

**Tabelle 48:** Aktivitäten der verwendeten Punktquellen im August/ September 2008.

Radioisotop	<sup>241</sup> Am	<sup>152</sup> Eu	<sup>133</sup> Ba	<sup>60</sup> Co
Aktivität [kBq]	46,9	12,4	11,0	3,0

## A7 Ergebnisse der Analysen für die Beton-Zusammensetzung

Die Herstellung einer Betonmatrix mit homogener Schwermetallkonzentration wurde im Vorfeld anhand einer 12-l-Beton-Probe getestet. Über das Zugabewasser wurden dem Beton (20,4 kg) Cadmium (22 g bzw. 0,1 Gew.-%), Quecksilber (23 g bzw. 0,1 Gew.-%) und Blei (104 g bzw. 0,5 Gew.-%) hinzugegeben. Die Beton-Zusammensetzung wurde sowohl mittels Massenspektrometrie, als auch PGNAA bestimmt. In Tabelle 49 sind die Ergebnisse der ICP-MS-Messung von 20 Beton-Pulverproben aufgelistet.

**Tabelle 49:** Berechnete und mit ICP-MS gemessene Konzentrationen von Cadmium, Quecksilber und Blei in den Beton-Proben.

Proben-Nr.	Gewicht [mg]	Cd (berechnet) [g·kg <sup>-1</sup> ]	Hg (berechnet) [g·kg <sup>-1</sup> ]	Pb (berechnet) [g·kg <sup>-1</sup> ]	Cd (ICP-MS) [g·kg <sup>-1</sup> ]	Hg (ICP-MS) [g·kg <sup>-1</sup> ]	Pb (ICP-MS) [g·kg <sup>-1</sup> ]
1_1	54,5	1,17	1,25	5,54	1,18	1,83	5,96
1_2	51,8	1,11	1,19	5,27	0,97	1,19	4,59
1_3	56,1	1,20	1,29	5,70	1,01	1,15	4,95

<sup>54</sup> Größe nach dem Paschen-Gesetz. Es besagt, dass in einem homogenen Feld die Durchschlagsspannung eine Funktion des Produktes aus Gasdruck (p) und Elektrodenabstand (d) ist.

<sup>55</sup> TE·F<sup>-1</sup> = Trübungseinheit pro Formazin



Proben-Nr.	Gewicht [mg]	Cd (berechnet) [g·kg <sup>-1</sup> ]	Hg (berechnet) [g·kg <sup>-1</sup> ]	Pb (berechnet) [g·kg <sup>-1</sup> ]	Cd (ICP-MS) [g·kg <sup>-1</sup> ]	Hg (ICP-MS) [g·kg <sup>-1</sup> ]	Pb (ICP-MS) [g·kg <sup>-1</sup> ]
1_4	68,7	1,47	1,58	6,98	0,76	0,76	3,37
2_1	55,4	1,19	1,27	5,63	1,16	1,08	6,15
2_2	58,8	1,26	1,35	5,98	1,16	1,11	6,05
2_3	56,6	1,21	1,30	5,75	0,83	0,80	4,47
2_4	52,9	1,13	1,21	5,38	0,91	0,69	4,07
3_1	53,4	1,14	1,22	5,43	1,02	0,91	5,15
3_2	51,1	1,09	1,17	5,20	1,12	1,14	6,14
3_3	58,2	1,25	1,33	5,92	1,31	1,24	7,19
3_4	57,0	1,22	1,31	5,79	0,97	0,89	5,56
4_1	51,1	1,09	1,17	5,20	0,81	0,76	4,26
4_2	63,5	1,36	1,46	6,46	1,10	0,99	5,47
4_3	57,7	1,24	1,32	5,87	1,14	1,04	5,98
4_4	59,8	1,28	1,37	6,08	1,21	1,28	7,44
5_1	68,2	1,46	1,56	6,93	1,31	1,28	6,91
5_2	52,3	1,12	1,20	5,32	1,11	1,20	6,21
5_3	62,0	1,33	1,42	6,30	1,24	1,15	6,62
5_4	62,6	1,34	1,44	6,36	1,15	1,03	6,15

Drei feste Bruchstücke der Beton-Probe wurden nach Budapest, zu dem dortigen Institut für Isotopenforschung geschickt. Das Institut verfügt über ein zertifiziertes PGNA-System (BRR) zur Quantifizierung von kleinen Proben. Die drei Proben wurden über einen Zeitraum von 6259 s (Probe Nr. 1) bzw. 54394 s (Probe Nr. 3) mit kalten Neutronen untersucht. Der Neutronenfluss hatte einen Wert von  $1,2 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Die Ergebnisse sind in Tabelle 50 dargestellt.

**Tabelle 50:** Ergebnisse der PGNA der Beton-Zusammensetzung, durchgeführt in Budapest

Proben-Nr.	1		3		5	
	Konzentration	Fehler	Konzentration	Fehler	Konzentration	Fehler
	[Gew.-%]	[%]	[Gew.-%]	[%]	[Gew.-%]	[%]
H <sub>2</sub> O	-	-	3,38	2,1	3,23	2,5
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	51,4 ppm	2,1	51,1 ppm	2,0	62,1 ppm	2,5
MgO	4,5	9	1,0	16	0,9	21
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1,4	6	1,4	6,0	1,9	4,9
SiO <sub>2</sub>	80	0,7	79	0,7	81	0,7
Cl	100 ppm	24	110 ppm	17	80 ppm	16
K <sub>2</sub> O	0,14	8	0,14	6,0	0,14	10
CaO	12,5	3,0	13,6	3,0	11,2	3,3
TiO <sub>2</sub>	0,129	3,9	0,128	3,6	0,119	4,1
MnO	-	-	420 ppm	4,8	340 ppm	6
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,60	4,3	0,71	4,0	0,65	4,6
Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1,7 ppm	3,7	1,30 ppm	3,2	1,14 ppm	4,2
Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3 ppm	29	4 ppm	23	2,5 ppm	13
Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1,9 ppm	6	1,6 ppm	5,8	1,3 ppm	6
Cd	0,076	2,0	0,084	2,0	0,063	2,0
Hg	0,127	2,2	0,167	2,1	0,109	3,2
Pb	0,6	24	0,6	16	0,9	21

## A8 Wirkungsquerschnitte von Gold

Gold wird standardmäßig als Resonanzsonde für die Messung des thermischen Neutronenflusses verwendet. Die Besonderheit bei Gold ist, dass es nur ein natürliches Isotop  $^{197}\text{Au}$  besitzt, welches bei 4,9 eV eine sehr starke Resonanz für die  $(n, \gamma)$ -Reaktion besitzt. In Abbildung 94 sind der totale und der Einfangsquerschnitt als Funktion der Energie dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass bis 10 eV der Neutroneneinfang den totalen Wirkungsquerschnitt dominiert.

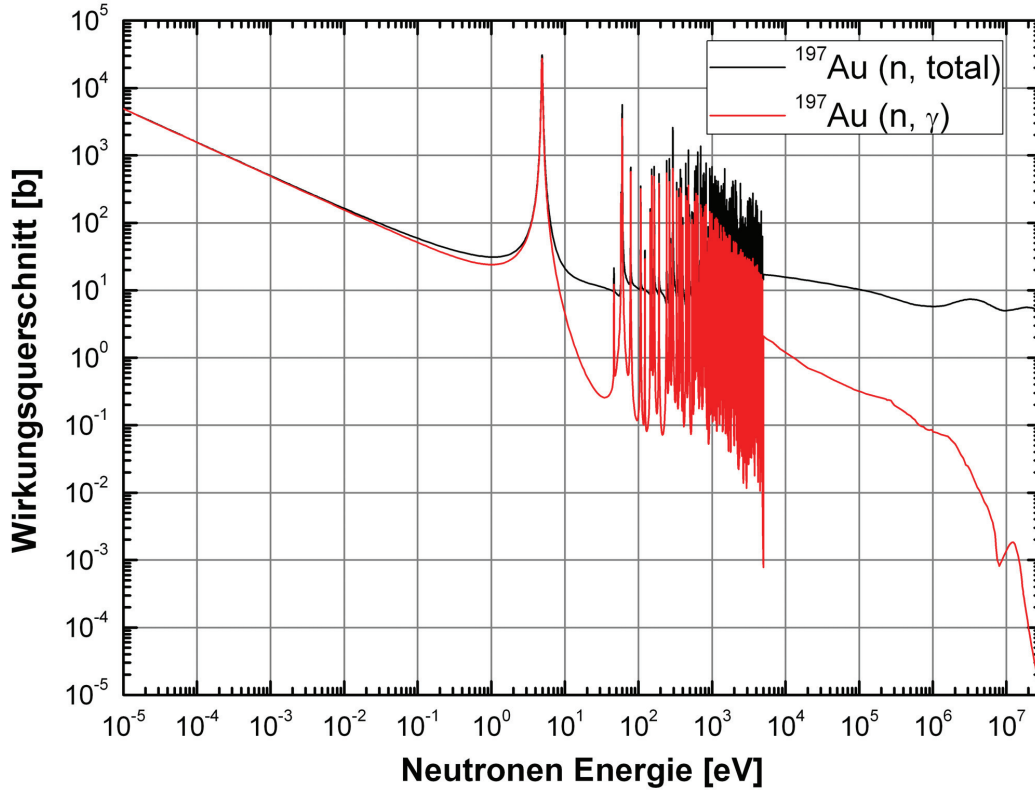


Abbildung 94: Totaler- und Einfangswirkungsquerschnitt von  $^{197}\text{Au}$  [ENDF/B-VI].

## A9 Absolute Effizienz des „Low-Level“-Messplatz-Detektors

Für die Messung des verzögerten Gamma-Spektrums der aktivierten Goldfolien wurde ein HPGe-Detektor der Firma Canberra (Modell GR3018) benutzt. Die relative Effizienz des Detektors beträgt 30 % und seine Auflösung hat bei 1332 keV einen Wert von 1,9 keV. In Abbildung 95 ist die Detektor-Effizienz bis 1,4 MeV als Funktion der Energie dargestellt. Die Daten wurden mit einer exponentiellen Polynomfunktion 1ten Grades gefittet [Kis1998]:

$$\varepsilon = \exp\left(\sum_{i=2}^2 a_i \cdot E_{\gamma}^{i-1}\right) \quad (\text{A9.1})$$

Die Fit-Parameter sind in Abbildung 95 angegeben.

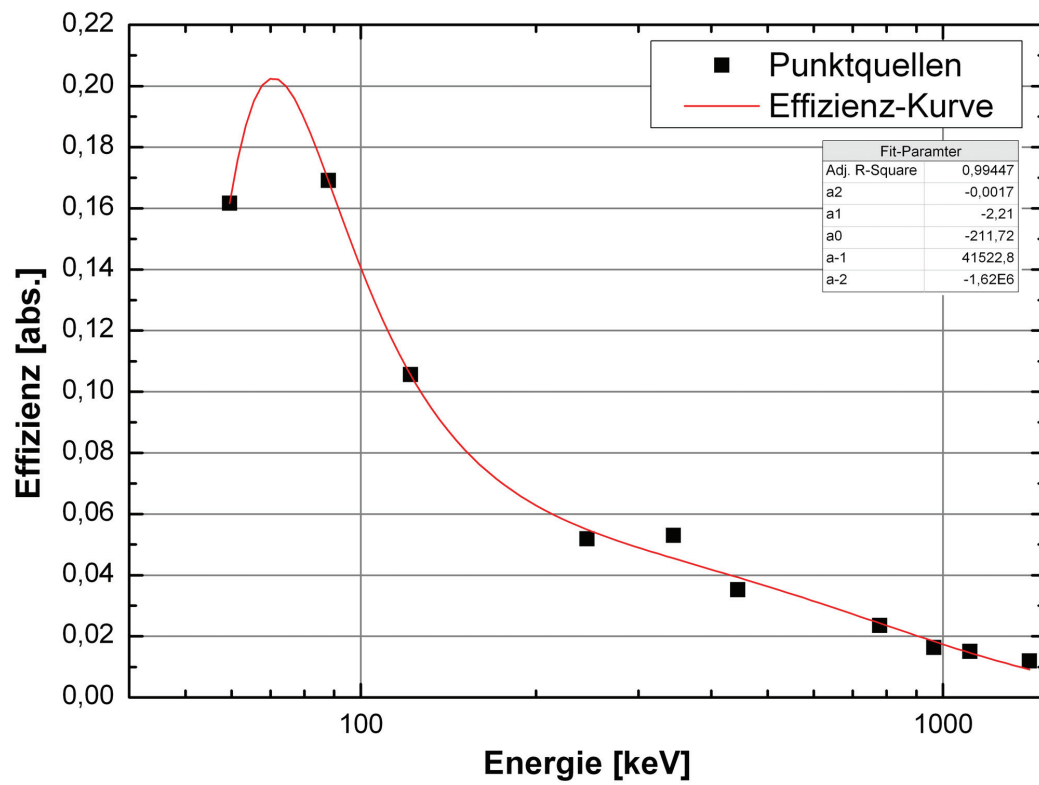


Abbildung 95: Effizienz des HPGe-Detektors mit 30 % relative Effizienz (Modell GR3018).

## Abbildungsverzeichnis

1	Grenzwerte für ausgewählte Elemente, die Konrad endgelagert werden dürfen	3
2	Klassifizierung der Neutronen nach ihrer Energie	8
3	Ergebnisse einer MCNP-Studie zur Berechnung der Eindringtiefe von Neutronen	10
4	Mikroskopische Wirkungsquerschnitte für ${}^6\text{Li}$ und ${}^{56}\text{Fe}$	13
5	Bindungsenergie pro Nukleon als Funktion der Anzahl der Nukleonen eines Kerns	14
6	Wirkungsquerschnitte für die D-D und D-T Fusionsreaktion	21
7	Schema eines Neutronengenerators	22
8	Neutronenenergie als Funktion der Deuteronenenergie für eine D-T-Reaktion	23
9	Schematische Darstellung des Photo-, Compton- und Paarbildungs-Effekts	29
10	Direkter Vergleich eines NaI- und HPGe-Detektors anhand eines ${}^{60}\text{Co}$ -Spektrums	31
11	Schematische Darstellung des PGNAA-Verfahrens	36
12	Spektrum des normierten Neutronenflusses innerhalb eines Betonfasses	37
13	Schematische Darstellung der zyklischen Neutronen-Aktivierung	39
14	Beispiel einer Reaktionskette, wie sie mit MCNP berechnet werden kann	44
15	Darstellung des MCNP-Modells der Experimentierhalle	49
16	Schematische Darstellung der Experimentierhalle und des Kontrollraums	52
17	Foto des Kontrollraums mit der Nuklearelektronik	53
18	Mit MCNP berechneter totaler Neutronenfluss in der Experimentierhalle	56
19	Foto der PGNAA-Anlage	60
20	Foto des Neutronenrohres	62
21	Darstellung der Zeitverzögerung des Neutronenpulses in Abhängigkeit vom Peakstrom	63
22	Foto des HPGe-Detektors	64
23	Schematische Darstellung der Verschaltung der Nuklearelektronik	66
24	Diagramm der Halbwertsbreite in Abhängigkeit von der Energie	67
25	Prompt-Gamma-Spektrum bei unterschiedlicher <i>Shaping Time</i>	68
26	Foto der PGNAA-Anlage für die Detektor-Vergleichsmessung	70
27	Direkter Vergleich eines Prompt-Gamma-Spektrums einer Betonprobe	71
28	Ausschnitt aus dem Prompt-Gamma-Spektrum einer Betonprobe mit Schwermetallen	72
29	Bestimmung der Halbwertszeit von ${}^{75\text{m}}\text{Ge}$	74
30	Ergebnisse einer MCNP-Studie zur Abschirmung thermischer Neutronen	76
31	Ergebnisse einer MCNP-Studie zur Abschirmung schneller Neutronen	76
32	Neutronenflüsse im Germanium-Kristall	77
33	Foto von der Auflösung einzelner ${}^6\text{Li}$ -Stücke in Wasser	80
34	Foto von der Hinzugabe von Flusssäure zu dem gesättigten Wasser	81
35	Schematische Aufbau für das Pressen der LiF-Plättchen	82
36	Foto von einem gesinterten LiF-Plättchen	83

37	Elektronenmikroskop-Aufnahme des $^6\text{LiF}$	84
38	Herstellung der $^6\text{Li}$ -Abschirmung	85
39	Foto von der verbauten $^6\text{Li}$ -Abschirmung	85
40	Prompt-Gamma-Spektrum eines betonierten Stahlfasses, mit und ohne Abschirmung	86
41	Prompt-Gamma-Spektren der leeren Graphitkammer	88
42	Germanium-Peak bei 596 keV	89
43	Prompt-Gamma-Spektren mit verschiedenen Moderatoren	90
44	Untergrund- und Punktquellenspektrum bis 3 MeV	95
45	Berechnete Effizienzkurve aus den Messungen der Standardpunktquellen	96
46	Prompt-Gamma-Spektrum eines leeren 25-l-Stahlfasses	97
47	Photopeak-Effizienz für eine Punktquelle im Zentrum der Messkammer	99
48	Detektor-Effizienz für die von einem 25-l-Fass emittierten Gamma-Strahlung	100
49	Bereiche mit der größten Nachweiswahrscheinlichkeit für Gamma-Strahlung	101
50	Detektor-Effizienz für die von einem 25-l-Fass (Beton) emittierten Gamma-Strahlung	102
51	Detektor-Effizienz für eine homogene Betonprobe in einem 25-l-Stahlfass	103
52	Detektor-Effizienz für ein leeres 50-l-Volumen und ein betoniertes 50-l-Stahlfass	105
53	XRD-Spektrum der HgO-Pulverprobe	109
54	Foto der Betonprobe	110
55	Ergebnisse der PGNA- und ICP-MS-Analyse der Betonprobe	111
56	Elektronenmikroskop-Aufnahme zweier Beton-Proben	112
57	EDX-Mapping der Betonprobe mit Schwermetallen	112
58	Foto der 25 l und 50 l Probenfässer	114
59	Luftbildaufnahme der Zeche Robert Müser	126
60	Darstellung der Charakterisierung inhomogener Probenzusammenstellungen	129
61	Prompt-Gamma-Spektrum der leeren Graphitkammer	132
62	Verzögertes-Gamma-Spektrum der leeren Graphitkammer	133
63	Prompt-Gamma-Spektrum der Harnstoff-Probe	134
64	Prompt-Gamma-Spektrum der Natriumchlorid-Probe	135
65	Prompt-Gamma-Spektren der Blei-, Quecksilber- und Cadmium-Probe	136
66	Prompt-Gamma-Spektrum der Gadolinium-Probe	137
67	Prompt-Gamma-Spektrum der Strontium-Probe	138
68	Prompt-Gamma-Spektrum des leeren 25-l-Stahlfasses	139
69	Prompt-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 1, niederenergetischer Bereich	140
70	Prompt-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 1, hochenergetischer Bereich	141
71	Prompt-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 2	142
72	Prompt-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 3	143
73	Prompt-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 4	144
74	Verzögertes-Gamma-Spektrum des Probenfasses Nr. 4	145
75	Prompt-Gamma-Spektrum der Erdreichprobe (Zeche Robert Müser)	146
76	Prompt-Gamma-Spektren der Quecksilber- und Cadmium-Probe	147
77	Prompt-Gamma-Spektren der Blei- und Cadmium-Probe	148
78	Prompt-Gamma-Spektrum der Cadmium-Probe im 50-l-Betonfass	149

Abbildungsverzeichnis		191
79	Mit MCNP berechnetes Neutronenspektrum in der leeren Graphitkammer	152
80	Konturplot des thermischen und schnellen Neutronenflusses in der leeren Messkammer	153
81	Konturplot des thermischen und schnellen Neutronenflusses (Graphitkammer + Probe)	153
82	Neutronenspektrum im Detektor-Kristall	154
83	Konturplot des thermischen und schnellen Neutronenflusses (Cadmiumhaltige Probe)	155
84	Foto einer der fünf Goldfolien	157
85	Totaler Wirkungsquerschnitt von $^{197}\text{Au}$ vs. Neutronenspektrum (leere Messkammer)	157
86	Impuls verschiedener Haupt-Gamma-Linien in Abhängigkeit von der H-Konzentration	162
87	Zählraten ausgesuchter Prompt-Gamma-Linien bei unterschiedlichen Cd-Konzentration	163
88	Thermischer Neutronenfluss in Abhängigkeit von der H- und Cd-Konzentration	164
89	Nachweisgrenzen für ausgesuchte Elemente in einer homogenen Probe (kurze Pulse)	168
90	Nachweisgrenzen für ausgesuchte Elemente in einer homogenen Probe (lange Pulse)	169
91	Nachweisgrenzen für ausgesuchte Elemente in einer heterogenen Probe (lange Pulse)	170
92	Prompt-Gamma-Spektren einer Beton-Probe (T-PGNAA und F-PGNAA)	172
93	Prompt-Gamma-Spektrum der leeren Graphitkammer und dem Cadmiumblech	183
94	Totaler- und Einfangwirkungsquerschnitt von $^{197}\text{Au}$	187
95	Effizienz des HPGe-Detektors mit 30 % relative Effizienz	188



## Tabellenverzeichnis

1	Bremsvermögen und mittlere Lebensdauer thermischer Neutronen	18
2	Unterstellte Elementzusammensetzung des Grundwassers	54
3	Strahlungswichtungsfaktoren $w_R$ für Neutronen nach NCRP-38 und ICRP-60	55
4	Berechnete Dosisleistung (MCNP) in den angrenzenden Räumen der Experimentierhalle	57
5	Berechnete Dosisleistung (MCNP) an der Oberfläche der Messkammer	57
6	Vom TÜV-Rheinland gemessene Ortsdosisleistung	58
7	Personen-Tiefendosis $H_P(10)$ an der Oberfläche des PGNA-Systems	59
8	Bremsvermögen und Bremsverhältnis einiger Elemente	61
9	Charakteristiken des Genie16-GT Neutronengenerators	61
10	Beispiel einer Exzitationszeit-Berechnung	63
11	Halbwertsbreiten für unterschiedliche Zeitkonstanten	67
12	Korrelation zwischen Shaping Time, Totzeit und Halbwertsbreite	68
13	Halbwertsbreite und Totzeit in Abhängigkeit von der Shaping Time	69
14	Spezifikationen der n-Typ HPGe koaxial Detektoren der Firma Canberra	69
15	Berechnung des schnellen Neutronenflusses im Germanium-Kristall	75
16	Zusammensetzung des für die Neutronenabschirmung genutzten Stahlzylinders	79
17	Peak-zu-Untergrundverhältnis von signifikanten Gamma-Linien	91
18	Fit-Parameter für die Effizienzkurven in den Abbildungen 48, 50 und 51	104
19	Charakteristika der verschiedenen Probenfässer	113
20	Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der leeren Graphitkammer	116
21	Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der Harnstoff-Probe	117
22	Analyse der Haupt-Gamma-Linien von $^{35}\text{Cl}$ , mit und ohne NaCl-Probe	118
23	Analyse der Haupt-Gamma-Linien von $^{113}\text{Cd}$ , $^{199}\text{Hg}$ und $^{207\text{m}}\text{Pb}$	119
24	Eindringtiefe thermischer Neutronen in Cadmium, Quecksilber und Blei	119
25	Analyse der Haupt-Gamma-Linien von $^{157}\text{Gd}$	120
26	Analyse der Haupt-Gamma-Linien von $^{87}\text{Sr}$	121
27	Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien des leeren Stahlfasses	122
28	Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien des Probenfasses Nr. 1	122
29	Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien des Probenfasses Nr. 2	123
30	Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien des Probenfasses Nr. 3	124
31	Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien des Probenfasses Nr. 4	125
32	Analyse einiger ausgewählter verzögerter Gamma-Linien des Probenfasses Nr. 4	126
33	Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der unbehandelten Erdreichprobe	128
34	Analyse einiger ausgewählter Prompt-Gamma-Linien der getrockneten Erdreichprobe	128
35	Analyse der $^{113}\text{Cd}$ -Gamma-Linie und der $^{199}\text{Hg}$ -Gamma-Linie	130
36	Analyse der $^{113}\text{Cd}$ -Gamma-Linie und der $^{207\text{m}}\text{Pb}$ -Gamma-Linie	130
37	Analyse der $^{113}\text{Cd}$ -Gamma-Linie	131
38	Massenschwächungskoeffizient verschiedener Materialien bei 558 keV	131
39	Nachweisgrenzen für Cadmium, in verschiedenen Entfernungen zum Detektor	131



40	Elemente, die für die Verwendung als Resonanzsonde geeignet sind	156
41	Ergebnisse der Resonanzsondenmessung	158
42	Mittlerer thermischer und mittlerer schneller Neutronenfluss in Probenfass Nr. 2	159
43	Berechnung der mittleren Neutronenflüsse an der Oberfläche des leeren 25-l-Stahlfasses	159
44	Berechnung der mittleren Neutronenflüsse in einem betonierten Stahlfass	160
45	Nachweisgrenzen für moderne PGNAA-Systeme an Forschungsreaktoren	166
46	Elementanalyse des $^6\text{Li}$ -Metalls	184
47	Analyse der 4,98 kg $\text{D}_2\text{O}$	185
48	Aktivitäten der verwendeten Punktquellen	185
49	Berechnete und mit ICP-MS gemessene Konzentrationen von Cd, Hg und Pb in Beton	185
50	Ergebnisse der PGNAA der Beton-Zusammensetzung	186

## Literaturverzeichnis

- [Alfassi1990] ALFASSI Z. B.: *Activation Analysis Volume 1*. CRC Press; (1990)
- [Alfassi1994] ALFASSI Z. B.: *Chemical Analysis by Nuclear Methods*. John Wiley & Sons; (1994)
- [Akkurt2004] AKKURT, H.; HOLLOWAY, J. P.; SMITH, L. E.: *The fixed point formulation for large sample PGNA—Part 2: experimental demonstration*. In: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A; 522; S. 13; (2004)
- [Anderson1987] ANDERSON, D. L.; ARAS, N. K.: *Nuclear Activation Analysis Techniques: A short course*. (1987)
- [Arbeitskreis1993] Arbeitskreis SIGMA: *Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen; Zählende hochauflösende gammaspektrometrische Messungen ohne Berücksichtigung des Probenbehandlungseinflusses*. Deutsches Institut für Normung e. V.; (1993)
- [Audi2003] AUDI, G.; BERSILLON, O.; BLACHOT, J.; WAPSTRA, A. H.: *The NUBASE evaluation of nuclear and decay properties*. In: Nuclear Physics A; 729; S. 3–128; (2003)
- [Bai2009] BAI, Y.: *Development of PGNA and Gamma Scanning systems for the quantification of toxic elements and activities in radioactive waste*. Interner Bericht im Forschungszentrum Jülich (IEF-6); Jülich; (2009)
- [Bai2010] BAI, Y.; WANG, D.; MAUERHOFER, E.; KETTLER, J.: *MC Simulation of Thermal Neutron Flux of Large Samples Irradiated by 14 MeV Neutrons*. In: Nuclear Science and Techniques; 21; (2010)
- [Bastian2004] BASTIAN, T.: *Radiochemische Analyse langlebiger kosmogener Radionuklide in Marsmeteoriten und Chondriten: Wirkungsquerschnitte, Produktionsraten und Modellrechnungen*. (Dissertation); Jülich; Forschungszentrum Jülich; (2004)
- [Bichsel1957] BICHSEL, H.; BONNER, T. W.: *Reactions  $Li^7(\alpha, n)B^{10}$ ,  $Li^7(\alpha, \alpha')Li^{7*}$* ,

- and  $B^{10}(n, \alpha)Li^7$ . In: Physical Review, 108, Nr. 4; S. 1025 – 1027; (1957)
- [Blaauw2005] BLAAUW, M.; BELGYAT.: *Neutron self-shielding correction for prompt gamma neutron activation analysis of large samples*. In: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; 265; Nr. 2; S. 257 – 259; (2005)
- [Blaauw2007] BLAAUW, M.; DEGENAAR, I.; DE GOELJ, J.: *Influence of the effective mass on the relative neutron density distribution inside a large sample in prompt-gamma neutron activation analysis*. In: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; 271; Nr. 3; S. 761 – 764; (2007)
- [BMU2001] BUNDESMINISTERIUM FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT: *Verordnung über den Schutz von Schäden durch ionisierende Strahlen Strahlenschutzverordnung – StrSchV*. Berlin; Stand 20.07.2001
- [BfS2009] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ: *Endlager Konrad. Antworten auf die meistgestellten Fragen*. [www.endlager-konrad.de](http://www.endlager-konrad.de); (2009)
- [BfS2002] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ: *Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad in Salzgitter*. [www.endlager-konrad.de](http://www.endlager-konrad.de); (2002)
- [Byrne1994] BYRNE, J.: *Neutrons, Nuclei and Matter: An Exploration of the Physics of Slow Neutrons*. IOP Publishing Ltd; (1994)
- [Caspary1998] CASPARY, G.: *Bestimmung von spaltbaren Stoffen in Abfallproben durch Neutroneninterrogation*. (Dissertation); Jülich; Forschungszentrum Jülich; (1998)
- [Cecille1991] CECILLE L. ET AL.: *Radioactive Waste management and disposal*. Elsevier Applied Science; (1991)
- [Chu1999] CHU, S. Y. F.; EKSTRÖM, L. P.; FIRESTONE, R. B.: *The Lund/ LBNL Nuclear Data Search*. <http://nucldata.nuclear.lu.se/nucldata/toi/index.asp> Version 2.0; (1999)
- [Csikai1987-1] CSIKAI, J.: *Handbook of Fast Neutron Generators Volume 1*. CRC Press; (1987)
- [Csikai1987-2] CSIKAI, J.: *Handbook of Fast Neutron Generators Volume 2*. CRC Press; (1987)

- [Currie1968] CURRIE, L. A.: *Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination: Application to Radiochemistry*. In: Analytical Chemistry; S. 586 – 593; (1968)
- [Debertin1991-1] DEBERTIN, K.: *Efficiency calibration in gamma-ray spectrometry with germanium detectors*. (1991)
- [Debertin1991-2] DEBERTIN, K.: *Corrections in gamma-ray spectrometry with germanium detectors*. (1991)
- [DeGeer2004] DE GEER, L. E.: *Currie detection limits in gamma-ray spectroscopy*. In: Applied Radiation and Isotopes; 61; S. 151 – 160; (2004)
- [Degenaar2004-1] DEGENAAR, I. H.: *Towards a methodology for large-sample prompt-gamma neutron-activation analysis*. (Dissertation); Delft; TU Delft; (2004)
- [Degenaar2004-2] DEGENAAR, I. H.; BLAAUW, M.; BODE, P.; DE GOELJ, J. J.: *Validation of MCNP for large-sample thermal-beam prompt-gamma neutron activation analysis*. In: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; 260; Nr. 2; S. 311 – 315; (2004)
- [DIN32645] DIN 32645: *Chemische Analytik - Nachweis-, Erfassungs- und Bestimmungsgrenze unter Wiederholbedingungen - Begriffe, Verfahren, Auswertung*. Deutsches Institut für Normung e. V.; (2008)
- [EADS2007] EADS-SODERN: *Neutron Generator GENIE 16GT*. Benutzerhandbuch; Limeil-Brévannes Cedex; Frankreich; (2007)
- [Eifler1995] EIFLER, P.: *Entwicklung und Bau einer Tomographieanlage für Routinemessungen an radioaktiven Abfallfässern zur Qualitätskontrolle*. (Dissertation); Jülich; Forschungszentrum Jülich; (1995)
- [Ehret961] EHRET, G.: *Die Bestimmung epithermischer Neutronenspektren mit Resonanzsonden (Sandwichmethode)*. In: Atompraxis; Sonderdruck aus Heft 11; (1961)
- [Entwistle1989] ENTWISTLE, A. K.; DYER, C. S.; QUENBY, J. J.; EVANS, A. J.; JOSHI, M.: *Measurement of neutron and proton-induced background in germanium gamma-ray spectrometers for use in a space environment*. In: Journal Physics E; Science Instrumentation, Nr. 22; S. 601 – 611; (1989)

- [Erdtmann1986] ERDTMANN, G.; PETRI, H.: *Nuclear Activation Analysis: Fundamentals and Techniques*. In: Offprints from treatise on analytical chemistry; 2. Auflage; Part 1; John Wiley & Sons; (1986)
- [ETH2008] ETH-ZÜRICH:  *$\gamma$ -Spektrometrie mit Szintillations- und Halbleiterdetektoren*. <http://www.analytik.ethz.ch/praktika/analytisch/radiochemie/unterlagen/P20.pdf>; (2008)
- [Finke2005] FINKE, S.: *Der Reinst-Germanium-Detektor als Instrument der Gamma-Spektroskopie*. Praktikumsanleitung; Dortmund; TU Dortmund; (2005)
- [Firestone2004] FIRESTONE, R. B.; EKSTRÖM, L. P.: *WWW Table of Radioactive Isotopes*. LBNL Isotopes Project – LUNDS Universität; <http://nucldata.nuclear.lu.se/nucldata/toi/>; (2004)
- [Fluck1999] FLUCK, E.; HEUMANN, K.: *Periodensystem der Elemente*. Wiley-VCH; 2. Auflage; Weinheim; (1999)
- [Gehrke1997] GEHRKE, R. J.; STREIER, G. G.: *Performance Test Results of Noninvasive Characterization of Resource Conservation and Recovery Act – Surrogate Waste by Prompt Gamma Neutron Activation Analysis*. (Report); Idaho National Engineering and Environmental Laboratory; Idaho Falls; (1997)
- [Gelsema2001] GELSEMA, S. J.: *Advanced  $\gamma$ -ray spectrometry dealing with coincidence and attenuation effects*. (Dissertation); Delft; TU Delft; (2001)
- [Givens1970] GIVENS, W. W.; MILLS, W. R.; CALDWELL, R. L.: *Cyclic Activation Analysis*. In: Nuclear Instruments and Methods; Nr. 80; S. 95 – 103; (1970)
- [Guinn1980] GUINN, V. P.: *Nuclear activation analysis 45 years after George Hevesy's discovery*. In: Journal of Radioanalytical Chemistry; Nr. 59; S. 309 – 314; (1980)
- [Han2005] HAN, X.: *Development of Monte Carlo code for Coincidence Prompt Gamma-ray Neutron Activation Analysis*. (Dissertation); Raleigh; North Carolina State University; (2005)
- [Hanna1980] HANNA, A. S.: *Development of a Prompt Gamma Neutron Activation Analysis facility at the university of Missouri research reactor and obsidian identification*. (Dissertation); Columbia; Universität von

- Missouri; (1980)
- [Hanslik2006] HANSLIK, R.: *Sicherheitstechnische Analyse und Auslegungsaspekte von Abschirmungen gegen Teilchenstrahlung am Beispiel von Spallationsanlagen im Megawatt Bereich*. (Dissertation); Jülich; Forschungszentrum Jülich; (2006)
- [Henkelmann1973] HENKELMANN, R.; BORN, H. J.: *Analytical Use of Neutron-Capture Gamma Rays*. In: Journal of Radioanalytical Chemistry; Nr. 16; S. 473; (1973)
- [Henkelmann2007] HENKELMANN, R.: *50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching*. TU München; Institut für Radiochemie; (2007)
- [Hertz2003] HERTZ, K. L.; HILTON N. R.; LUND J. C.; VAN SCYOC J. M.: *Alpha-emitting radioisotopes for switchable neutron generators*. In: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A; Nr. 505; S. 41 – 45; (2003)
- [Holleman2007] HOLLEMAN, A. F. ; WIBERG, E. ; WIBERG, N.: *Lehrbuch der Anorganischen Chemie*. Walter de Gruyter; München; (2007)
- [Holloway2004] HOLLOWAY, J. P.; AKKURT, H.: *The fixed point formulation for large sample PGNAA-Part 1: theory*. In: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A; Nr. 522; S. 13; (2004)
- [IAEA2007] IAEA: *Database of Prompt Gamma Rays from Slow Neutron Capture for Element Analysis*. IAEA; Wien; (2007)
- [IAEA1998] IAEA: *Status of Experimental and Evaluated Discrete  $\gamma$ -Ray Production at  $E_n=14.5$  MeV*. Final Report of Research Contract 7809/RB; IAEA; Wien; (1998)
- [Jericha2005] JERICHA, E.: *Vorlesungsskriptum Neutronen und Kernphysik*. Wien; TU Wien; (2005)
- [Jordan1964] JORDAN, E.; SCHIERLING, H.: *Americium-Beryllium and Plutonium-Beryllium Neutron Source Relative Effectiveness in Prompt- $\gamma$  Neutron-Activation Analysis*. In: International Journal of Applied Radiation and Isotopes; Nr. 15; S. 427 – 436; (1964)

- [Keiskuke1996] KEISUKE, S.; KOBAYASHI, K.; SATO, W.; NAKAHARA, H.; TOMIZAWA, T.: *Nondestructive Determination of Major Element in a Large Sample by Prompt Gamma Ray Neutron Activation Analysis*. In: Analytical Chemistry; 68; Nr. 13; S. 2203 – 2209; (1996)
- [Kettler2008-1] KETTLER, J.; NABBI, R.; MAUERHOFER, E.: *Modelling of a Prompt Gamma Neutron Activation System for Characterisation of Radioactive Materials*. RRFM; Hamburg; (2008)
- [Kettler2008-2] KETTLER, J.; BAI, Y.; MAUERHOFER, E.; NABBI, R.; ODOJ, R.: *Modeling of a prompt gamma neutron activation system for non-destructive determination of toxic elements in radioactive waste packages*. (Report); Jülich; Forschungszentrum Jülich; (2008)
- [Kis1998] KIS, Z. ET. AL.: *Comparison of efficiency functions for Ge gamma-ray detectors in a wide energy range*. In: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A; Nr. 418; S. 374 – 786; (1998)
- [Knoll1989] KNOLL, G.: *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley&Sons; Second Edition; (1989)
- [Krause1972] KRAUSE, H.: *Die Lagerung radioaktiver Abfälle*. In: Naturwissenschaften; 59 Jg.; Heft 9; S. 412 – 417; (1972)
- [Krempel2004] KREMPEL, J.: *Optimierung und Durchführung einer  $\beta$ -Asymmetriemessung im Zerfall polarisierter Neutronen*. (Diplomarbeit); Heidelberg; Universität Heidelberg; (2004)
- [Krieger2007] KRIEGER, H.: *Grundlagen der Strahlungsphysik und des Strahlenschutzes*. Springer Verlag; 2. Auflage; (2007)
- [Krudejová2005] KUDEJOVÁ, P. ET AL.: *On the construction of a new instrument for cold-neutron prompt gamma-ray activation analysis at the FRM-II*. In: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; 265; Nr. 2; S. 221 – 227; (2005)
- [Lehmann2005] LEHMANN, E.; FREI, G.; NORDLUND, A.; DAHL, B.: *Neutron Radiography with 14 MeV Neutrons from a Neutron Generator*. In: IEEE Transactions on Nuclear Science; 52; Nr. 1; S. 389; (2005)
- [Lin2004] LIN, X.; ALBER, D.; HENKELMANN, R.: *Elemental contents in Napoleon's hair cut before and after his death: did Napoleon die of arsenic*

- poisoning?* In: Analytical and Bioanalytical Chemistry; Nr. 379; S. 218 – 220; (2004)
- [Lindstrom2008] LINDSTROM, R.; FLEMING, R.: *Neutron Self-Shielding Factors for Simple Geometries*. In: Chemical Analysis; Nr. 53; S. 855 – 859; (2008)
- [Loche2006] LOCHE, F.; JALLU, F.: *Development of a Matrix Correction Methode to improve Non-Destructive Assay of Fissile Mass in a-Low Level Waste Drums*. IYNC; Stockholm; Schweden; (2006)
- [Lone1980] LONE, M.; SANTRY, D.; INGLIS M.: *MeV neutron production from thermal neutron capture in Li and B compounds*. In: Nuclear Instruments and Methods; Nr. 174; S. 521 – 529; (1980)
- [Lyon1957] LYON, W. S.; ELDRIGE, J. S.: *Radioactive  $Ge^{77}$  and  $Ge^{77m}$* . In: Physical Review; 107; Nr. 4; (1957)
- [Mannhart1968] MANNHART, W.; VONACH, H. K.: *Isomere Wirkungsquerschnittsverhältnisse beim thermischen Neutroneneinfang im Bereich der 2  $p_{1/2}$  und 1  $g_{1/2}$  Schalenmodellzustände*. In: Zeitschrift für Physik; 210; S. 13 – 31; (1968)
- [Mauerhofer1995] MAUERHOFER, E.: *Aufbau und Test eines Anticompton-Spektrometers zur Neutronenaktivierungsanalyse*; (Dissertation); Mainz; Universität Mainz; (1995)
- [Mauerhofer2009] MAUERHOFER, E.: *private Mitteilungen*; (2009)
- [Mauerhofer2008] MAUERHOFER, E.; KETTLER, J.; BAI, Y.; ODOJ, R.: *An innovative method based on Prompt-Gamma-Neutron-Activation-Analysis for non-destructive determination of toxic elements in radioactive waste drums*. RADWAP; Würzburg; (2008)
- [Mayer-Kuckuk1994]MAYER-KUCKUK, T.: *Kernphysik*. B. G. Teubner; 6. Auflage; Bonn; (1994)
- [Mayer-Kuckuk1997]MAYER-KUCKUK, T.: *Atomphysik*. B. G. Teubner; 5. Auflage; Bonn; (1997)
- [Mishra2005] MISHRA, K. K.: *Development of a Thermal Neutron Imaging Facility at the N.C. State University PULSTAR reactor*. (Dissertation); Raleigh; North Carolina State University; (2005)



- [Molnár2004] MOLNÁR, G. L.: *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis*. Kluwer Academic Publishers; Budapest; (2004)
- [MPA2007] MPA MATERIALPRÜFUNGSAMT NRW: *Technisches Datenblatt für das Albedodosimeter*. [www.dosimetrie.de](http://www.dosimetrie.de); (2007)
- [Nair2004] NAIR, A. G. C. ET AL.: *Analysis of alloys by prompt gamma-ray neutron activation*. In: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A; Nr. 516; S. 143 – 148; (2004)
- [Nargolwalla1973] NARGOLWALLA S. S.; PRZYBYLOWICZ E. P.: *Activation Analysis with Neutron Generators*. John Wiley & Sons; Chemical Analysis; Nr. 39; (1973)
- [Navqi2007] NAVQI, A. A.; NAGADI, M. M.; AL-AMOUDI, O. S. B.: *Non-destructive evaluation of concrete samples using PGNAA technique*. In: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; 271; Nr. 1; S. 151 – 154; (2007)
- [Nienhaus2003] NIENHAUS, K.; BAYER A. K.; LINDENAU, J.: *Qualitätsmanagement bei der Schüttgutförderung durch Online-Analyse*. <http://www.bgmr.rwth-aachen.de/downloads>; (2003)
- [NSD2010] NSD Fusion: *Developer and manufacturer of linear geometry, plasma-gas target, longest life neutron generators*; [www.nsd-fusion.com](http://www.nsd-fusion.com); (2010)
- [Oliveira1997] OLIVEIRA, C.; SALGADO, J.; CARVALHO, F. G.: *Optimization of PGNAA instrument design for cement raw materials using the MCNP code*. In: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; 216; Nr. 2; S. 191–198; (1997)
- [Owens1985] OWENS, A.: *Evaluation of Compton Contamination Events in an Actively Shielded Ge Gamma-Ray Detector*. In: Astrophysics and Space Science; 112; S. 75 – 81; (1985)
- [Pehl1981] PEHL, R. H.; ET AL.: *Radiation damage resistance of reverse electrode Ge coaxial Detectors*. In: IEEE Transactions on Nuclear Science, Nr. 28; S. 572 – 578; (1981)
- [Pehl1996] PEHL, R. H.; ET AL.: *Gamma-ray escape peak characteristics of radiation-damaged reverse-electrode germanium coaxial detectors*. In: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A; Nr. 381, S. 97 – 102; (1996)

- [Pepelnik1989] PEPELNIK, R.: *Sensitivities of high-flux 14 MeV Neutron Activation Analysis*. In: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B; Nr. 40/41; S. 1205 – 1207; (1989)
- [Produzhina2005] PRODUZHINA, T.: *Graphite as radioactive waste: Corrosion behaviour under final repository conditions and thermal treatment*. (Dissertation); Jülich; Forschungszentrum Jülich; (2005)
- [Reijonen2005] REIJONEN, J. ET AL.: *D–D neutron generator development at LBNL*. In: Applied Radiation and Isotopes; 63; S. 757 – 763; (2005)
- [Rodloff1981] RODLOFF, E.; SCHÖNFELD, E.; GROCHE, K.; GREUPNER, H.; ROTHE, H.: *Ein einfacher Aufbau zur Erzeugung eines Feldes thermischer Neutronen*. In: Isotopenpraxis, Bd. 18; S. 57 – 60; (1981)
- [Rose2009] ROSE, J.: *Bestimmung der Photopeak-Effizienz eines HPGe-Detektors im Energiebereich 0,05 – 10 MeV für die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse*. (Diplomarbeit); Jülich; Forschungszentrum Jülich; (2009)
- [Rossbach1993] ROSSBACH, M.; STOEPLER, M.; BYRNE A.: *Prompt and delayed NAA techniques for the characterization of specimen bank materials*. In: The Science of the Total Environment; Nr. 139/140; S. 411 – 419; (1993)
- [Schpolski1988] SCHPOLSKI, E. W.: *Atomphysik 1- Einführung in die Atomphysik*. VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften; 18. Auflage; (1988)
- [Schpolski1985] SCHPOLSKI, E. W.: *Atomphysik 2*. VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften; 13. Auflage; (1985)
- [Schulze1962] SCHULZE, W.: *Neutronenaktivierung als analytisches Hilfsmittel*. Ferdinand Enke Verlag; Band 50; Stuttgart; (1962)
- [Schwedt1995] SCHWEDT, G.: *Analytische Chemie*. Thieme Verlag; Stuttgart; S. 280 – 286; (1995)
- [Shultis2006] SHULTIS, J. K.; FAW, R. E.: *An MCNP primer*. (Report); Kansas City; Kansas State University; (2006)
- [Smith1952] SMITH, A. B.: *The Nuclear Spectrum of  $Ge^{77*}$* . In: Physical Review; 86, Nr. 1; (1952)

- [Simakov1998] SIMAKOV, S. P.; PAVLIK, A.; VONACH, H.; HLAVÁČ, S.: *Status of experimental and evaluated discrete  $\gamma$ -ray production at  $E_n=14.5$  MeV*. IAEA; Wien; (1998)
- [Stöcker1998] STÖCKER, H.: *Taschenbuch der Physik*. Harri Deutsch; 3. Auflage; Frankfurt am Main; (1998)
- [Sueki1996] SUEKI, K. ET AL.: *Nondestructive Determination of Major Elements in a Large Sample by Prompt  $\gamma$ -Ray Neutron Activation Analysis*. In: Analytical Chemistry; 68; Nr. 13; S. 2203 – 2009; (1996)
- [Suppes2007] SUPPES G. J.; STORVICK T.: *Sustainable Nuclear Power*. Elsevier Academic Press; (2007)
- [Szentmiklósi2007] SZENTMIKLÓSI, L.; RÉVEAY Z.; BELGYA, T.: *An improved beam chopper setup at the Budapest PGAA facility*. In: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B; Nr. 263; S. 90 – 94; (2007)
- [Trubert1991] TRUBERT, D.; DUPLATRE, G.; ABBÉ, J. CH.: *Hydrogen Effects in Neutron Activation Analysis*. In: Applied Radiation and Isotopes, 42, Nr. 8; S. 699 – 705; (1991)
- [Tzika2004] TZIKA, F.; STAMATELATOS, I.; KALEF-EZRA, J.; BODE, P.: *Large Sample Neutron Activation Analysis: correction for neutron and gamma attenuation*. In: Nukleonika; Nr. 49; S. 115 – 121; (2004)
- [VDZ2007] VDZ Verein Deutscher Zementwerke e.V.: *Zement Taschenbuch*. Verlag Bau+Technik; 50. Auflage; Düsseldorf; (2007)
- [WipplerTec2009] WIPPLERTEC: *PGNAA – Prompt Gamma Neutron Activation Analysis*. 3D Animation zur Darstellung des PGNAA-Prototyp-Systems; [www.wipplertec.de](http://www.wipplertec.de); Bochum; (2009)
- [Wirtz1958] WIRTZ K.; BECKURTS K. H.: *Elementare Neutronenphysik*. Springer Verlag; (1958)
- [X-5Team2005] X-5 MONTE CARLO TEAM: *A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5*. (Handbuch); Los Alamos National Laboratory; (2005)
- [Yaroshevsky2006] YAROSHEVSKY, A. A.: *Abundances of Chemical Elements in the Earth's Crust*. Geochemistry International, 44, Nr. 1, S. 48 – 55; (2006)

## Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all jenen danken, die zum Gelingen der vorliegenden Arbeit beigetragen haben.

Meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Reinhard Odoj danke ich für die Möglichkeit zur Anfertigung dieser Arbeit sowie für die Unterstützung, die er mir hat zukommen lassen. Ohne seine offene und entgegenkommende Art wäre diese Arbeit so nicht zustande gekommen.

Bei Herrn Prof. Dr. Bruno Thomauske und Herrn Prof. Dr. Gernot Heger möchte ich mich dafür bedanken, dass sie die Begutachtung meiner Arbeit übernommen haben.

Ein ganz besonderer Dank gebührt Herrn Dr. Eric Mauerhofer für seine unzähligen Anregungen, die stets sehr gute Betreuung und Unterstützung. Dadurch hat er einen wertvollen Beitrag zum erfolgreichen Abschluss dieser Arbeit geleistet.

Ich möchte mich bei dem „Verein der Freunde und Förderer der KFA“, vertreten durch Herrn Dr. Heinz Geiser (GNS mbH), für das mir zur Verfügung gestellte Stipendium bedanken. Hierdurch konnte ich meine Arbeit unabhängig und zügig durchführen.

Bei Herrn Dr. Guido Caspary, Herrn Dipl.-Ing. Rudolf Printz und den Kollegen aus dem Geschäftsbereich Nuklear-Service (FZJ) möchte ich mich für die finanzielle und kompetente Unterstützung des PGNA-Projektes bedanken. Sie haben in entscheidender Weise zur Durchführung der Experimente und damit zum Gelingen meiner Arbeit beigetragen.

Frau Dr. Hildegard Curtius, Frau Dr. Martina Klinkenberg, Frau Dipl.-Chem. Birte Hansen, Herrn Dipl.-Min. Andreas Neumann, Herrn Rudolf Enge und Herrn Gerhard Ritz möchte ich für die zahlreichen Hinweise und Unterstützung bei der Herstellung der  $^6\text{Li}$ -Abschirmung bzw. Proben danken.

Herrn Prof. Dr. Rahim Nabbi und Herrn Dipl.-Ing. Peter Bourauel möchte ich für ihre vielen aufschlussreichen Gespräche und die Unterstützung bei der Einführung in MCNP danken.

Herrn Dr. Matthias Rossbach, Herrn Dipl.-Ing. Andreas Havenith und Herrn Florian Esser möchte ich für die gewissenhafte Korrektur des Manuskriptes danken.

Den Kolleginnen und Kollegen im Institut (IEF-6) möchte ich für die tolle und herzliche Arbeitsatmosphäre danken. Das freundschaftliche Miteinander und die zahlreichen Hinweise zu meiner Arbeit waren eine sehr große Hilfe.

Ein herzlicher Dank gilt meinen Kommilitoninnen und Kommilitonen vom Studium-Universale (FZJ), die zahlreichen Aktivitäten mit ihnen zusammen haben mir viel Kraft gegeben. Ferner danke ich meinen Freunden für ihre anregenden Gespräche und mentale Unterstützung.

Den allergrößten Dank schulde ich meiner Familie. Meinen Eltern möchte ich vom tiefsten Herzen dafür danken, dass sie mich immer bei meinen Entscheidungen unterstützt haben. Meinem 1a Bruder und meiner 1a Schwester möchte ich für ihre Motivation und ihr Vorbild, das sie mir sind, danken!!



1. **Einsatz von multispektralen Satellitenbilddaten in der Wasserhaushalts- und Stoffstrommodellierung – dargestellt am Beispiel des Rureinzugsgebietes**  
von C. Montzka (2008), XX, 238 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-508-1
2. **Ozone Production in the Atmosphere Simulation Chamber SAPHIR**  
by C. A. Richter (2008), XIV, 147 pages  
ISBN: 978-3-89336-513-5
3. **Entwicklung neuer Schutz- und Kontaktierungsschichten für Hochtemperatur-Brennstoffzellen**  
von T. Kiefer (2008), 138 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-514-2
4. **Optimierung der Reflektivität keramischer Wärmedämmschichten aus Yttrium-teilstabilisiertem Zirkoniumdioxid für den Einsatz auf metallischen Komponenten in Gasturbinen**  
von A. Stuke (2008), X, 201 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-515-9
5. **Lichtstreuende Oberflächen, Schichten und Schichtsysteme zur Verbesserung der Lichteinkopplung in Silizium-Dünnschichtsolarzellen**  
von M. Berginski (2008), XV, 171 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-516-6
6. **Politiksznarien für den Klimaschutz IV – Szenarien bis 2030**  
hrsg.von P. Markewitz, F. Chr. Matthes (2008), 376 Seiten  
ISBN 978-3-89336-518-0
7. **Untersuchungen zum Verschmutzungsverhalten rheinischer Braunkohlen in Kohledampferzeugern**  
von A. Schlüter (2008), 164 Seiten  
ISBN 978-3-89336-524-1
8. **Inorganic Microporous Membranes for Gas Separation in Fossil Fuel Power Plants**  
by G. van der Donk (2008), VI, 120 pages  
ISBN: 978-3-89336-525-8
9. **Sinterung von Zirkoniumdioxid-Elektrolyten im Mehrlagenverbund der oxidkeramischen Brennstoffzelle (SOFC)**  
von R. Mücke (2008), VI, 165 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-529-6
10. **Safety Considerations on Liquid Hydrogen**  
by K. Verfondern (2008), VIII, 167 pages  
ISBN: 978-3-89336-530-2

11. **Kerosinreformierung für Luftfahrtanwendungen**  
von R. C. Samsun (2008), VII, 218 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-531-9
12. **Der 4. Deutsche Wasserstoff Congress 2008 – Tagungsband**  
hrsg. von D. Stolten, B. Emonts, Th. Grube (2008), 269 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-533-3
13. **Organic matter in Late Devonian sediments as an indicator for environmental changes**  
by M. Kloppisch (2008), XII, 188 pages  
ISBN: 978-3-89336-534-0
14. **Entschwefelung von Mitteldestillaten für die Anwendung in mobilen Brennstoffzellen-Systemen**  
von J. Latz (2008), XII, 215 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-535-7
15. **RED-IMPACT**  
**Impact of Partitioning, Transmutation and Waste Reduction Technologies on the Final Nuclear Waste Disposal**  
**SYNTHESIS REPORT**  
ed. by W. von Lensa, R. Nabbi, M. Rossbach (2008), 178 pages  
ISBN 978-3-89336-538-8
16. **Ferritic Steel Interconnectors and their Interactions with Ni Base Anodes in Solid Oxide Fuel Cells (SOFC)**  
by J. H. Froitzheim (2008), 169 pages  
ISBN: 978-3-89336-540-1
17. **Integrated Modelling of Nutrients in Selected River Basins of Turkey**  
Results of a bilateral German-Turkish Research Project  
project coord. M. Karpuzcu, F. Wendland (2008), XVI, 183 pages  
ISBN: 978-3-89336-541-8
18. **Isotopengeochemische Studien zur klimatischen Ausprägung der Jüngerer Dryas in terrestrischen Archiven Eurasiens**  
von J. Parplies (2008), XI, 155 Seiten, Anh.  
ISBN: 978-3-89336-542-5
19. **Untersuchungen zur Klimavariabilität auf dem Tibetischen Plateau - Ein Beitrag auf der Basis stabiler Kohlenstoff- und Sauerstoffisotope in Jahrringen von Bäumen waldgrenznaher Standorte**  
von J. Griessinger (2008), XIII, 172 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-544-9

20. **Neutron-Irradiation + Helium Hardening & Embrittlement Modeling of 9%Cr-Steels in an Engineering Perspective (HELENA)**  
by R. Chaouadi (2008), VIII, 139 pages  
ISBN: 978-3-89336-545-6
21. **in Bearbeitung**
22. **Verbundvorhaben APAWAGS (AOEV und Wassergenerierung) – Teilprojekt: Brennstoffreformierung – Schlussbericht**  
von R. Peters, R. C. Samsun, J. Pasel, Z. Porš, D. Stolten (2008), VI, 106 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-547-0
23. **FREEVAL**  
Evaluation of a Fire Radiative Power Product derived from Meteosat 8/9 and Identification of Operational User Needs  
Final Report  
project coord. M. Schultz, M. Wooster (2008), 139 pages  
ISBN: 978-3-89336-549-4
24. **Untersuchungen zum Alkaliverhalten unter Oxycoal-Bedingungen**  
von C. Weber (2008), VII, 143, XII Seiten  
ISBN: 978-3-89336-551-7
25. **Grundlegende Untersuchungen zur Freisetzung von Spurstoffen, Heißgaschemie, Korrosionsbeständigkeit keramischer Werkstoffe und Alkalirückhaltung in der Druckkohlenstaubfeuerung**  
von M. Müller (2008), 207 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-552-4
26. **Analytik von ozoninduzierten phenolischen Sekundärmetaboliten in *Nicotiana tabacum* L. cv Bel W3 mittels LC-MS**  
von I. Koch (2008), III, V, 153 Seiten  
ISBN 978-3-89336-553-1
27. **IEF-3 Report 2009. Grundlagenforschung für die Anwendung**  
(2009), ca. 230 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-554-8
28. **Influence of Composition and Processing in the Oxidation Behavior of MCrAlY-Coatings for TBC Applications**  
by J. Toscano (2009), 168 pages  
ISBN: 978-3-89336-556-2
29. **Modellgestützte Analyse signifikanter Phosphorbelastungen in hessischen Oberflächengewässern aus diffusen und punktuellen Quellen**  
von B. Tetzlaff (2009), 149 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-557-9



30. **Nickelreaktivlot / Oxidkeramik – Fügungen als elektrisch isolierende Dichtungskonzepte für Hochtemperatur-Brennstoffzellen-Stacks**  
von S. Zügner (2009), 136 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-558-6
31. **Langzeitbeobachtung der Dosisbelastung der Bevölkerung in radioaktiv kontaminierten Gebieten Weißrusslands – Korma-Studie**  
von H. Dederichs, J. Pillath, B. Heuel-Fabianek, P. Hill, R. Lennartz (2009),  
Getr. Pag.  
ISBN: 978-3-89336-532-3
32. **Herstellung von Hochtemperatur-Brennstoffzellen über physikalische Gasphasenabscheidung**  
von N. Jordán Escalona (2009), 148 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-532-3
33. **Real-time Digital Control of Plasma Position and Shape on the TEXTOR Tokamak**  
by M. Mitri (2009), IV, 128 pages  
ISBN: 978-3-89336-567-8
34. **Freisetzung und Einbindung von Alkalimetallverbindungen in kohle-befeuerten Kombikraftwerken**  
von M. Müller (2009), 155 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-568-5
35. **Kosten von Brennstoffzellensystemen auf Massenbasis in Abhängigkeit von der Absatzmenge**  
von J. Werhahn (2009), 242 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-569-2
36. **Einfluss von Reoxidationszyklen auf die Betriebsfestigkeit von anodengestützten Festoxid-Brennstoffzellen**  
von M. Ettler (2009), 138 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-570-8
37. **Großflächige Plasmaabscheidung von mikrokristallinem Silizium für mikromorphe Dünnschichtsolarmodule**  
von T. Kilper (2009), XVII, 154 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-572-2
38. **Generalized detailed balance theory of solar cells**  
by T. Kirchartz (2009), IV, 198 pages  
ISBN: 978-3-89336-573-9
39. **The Influence of the Dynamic Ergodic Divertor on the Radial Electric Field at the Tokamak TEXTOR**  
von J. W. Coenen (2009), xii, 122, XXVI pages  
ISBN: 978-3-89336-574-6

40. **Sicherheitstechnik im Wandel Nuklearer Systeme**  
von K. Nünighoff (2009), viii, 215 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-578-4
41. **Pulvermetallurgie hochporöser NiTi-Legierungen für Implantat- und Dämpfungsanwendungen**  
von M. Köhl (2009), XVII, 199 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-580-7
42. **Einfluss der Bondcoatzusammensetzung und Herstellungsparameter auf die Lebensdauer von Wärmedämmschichten bei zyklischer Temperaturbelastung**  
von M. Subanovic (2009), 188, VI Seiten  
ISBN: 978-3-89336-582-1
43. **Oxygen Permeation and Thermo-Chemical Stability of Oxygen Permeation Membrane Materials for the Oxyfuel Process**  
by A. J. Ellett (2009), 176 pages  
ISBN: 978-3-89336-581-4
44. **Korrosion von polykristallinem Aluminiumoxid (PCA) durch Metalljodidschmelzen sowie deren Benetzungseigenschaften**  
von S. C. Fischer (2009), 148 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-584-5
45. **IEF-3 Report 2009. Basic Research for Applications**  
(2009), 217 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-585-2
46. **Verbundvorhaben ELBASYS (Elektrische Basissysteme in einem CFK-Rumpf) - Teilprojekt: Brennstoffzellenabgase zur Tankinertisierung - Schlussbericht**  
von R. Peters, J. Latz, J. Pasel, R. C. Samsun, D. Stolten  
(2009), xi, 202 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-587-6
47. **Aging of <sup>14</sup>C-labeled Atrazine Residues in Soil: Location, Characterization and Biological Accessibility**  
by N. D. Jablonowski (2009), IX, 104 pages  
ISBN: 978-3-89336-588-3
48. **Entwicklung eines energetischen Sanierungsmodells für den europäischen Wohngebäudesektor unter dem Aspekt der Erstellung von Szenarien für Energie- und CO<sub>2</sub> - Einsparpotenziale bis 2030**  
von P. Hansen (2009), XXII, 281 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-590-6

49. **Reduktion der Chromfreisetzung aus metallischen Interkonnektoren für Hochtemperaturbrennstoffzellen durch Schutzschichtsysteme**  
von R. Trebbels (2009), iii, 135 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-591-3
50. **Bruchmechanische Untersuchung von Metall / Keramik-Verbundsystemen für die Anwendung in der Hochtemperaturbrennstoffzelle**  
von B. Kuhn (2009), 118 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-592-0
51. **Wasserstoff-Emissionen und ihre Auswirkungen auf den arktischen Ozonverlust**  
**Risikoanalyse einer globalen Wasserstoffwirtschaft**  
von T. Feck (2009), 180 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-593-7
52. **Development of a new Online Method for Compound Specific Measurements of Organic Aerosols**  
by T. Hohaus (2009), 156 pages  
ISBN: 978-3-89336-596-8
53. **Entwicklung einer FPGA basierten Ansteuerungselektronik für Justageeinheiten im Michelson Interferometer**  
von H. Nöldgen (2009), 121 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-599-9
54. **Observation – and model – based study of the extratropical UT/LS**  
by A. Kunz (2010), xii, 120, xii pages  
ISBN: 978-3-89336-603-3
55. **Herstellung polykristalliner Szintillatoren für die Positronen-Emissions-Tomographie (PET)**  
von S. K. Karim (2010), VIII, 154 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-610-1
56. **Kombination eines Gebäudekondensators mit H<sub>2</sub>-Rekombinatorelementen in Leichtwasserreaktoren**  
von S. Kelm (2010), vii, 119 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-611-8
57. **Plant Leaf Motion Estimation Using A 5D Affine Optical Flow Model**  
by T. Schuchert (2010), X, 143 pages  
ISBN: 978-3-89336-613-2
58. **Tracer-tracer relations as a tool for research on polar ozone loss**  
by R. Müller (2010), 116 pages  
ISBN: 978-3-89336-614-9

59. **Sorption of polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) to Yangtze River sediments and their components**  
by J. Zhang (2010), X, 109 pages  
ISBN: 978-3-89336-616-3
60. **Weltweite Innovationen bei der Entwicklung von CCS-Technologien und Möglichkeiten der Nutzung und des Recyclings von CO<sub>2</sub>**  
Studie im Auftrag des BMWi  
von W. Kuckshinrichs et al. (2010), X, 139 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-617-0
61. **Herstellung und Charakterisierung von sauerstoffionenleitenden Dünnschichtmembranstrukturen**  
von M. Betz (2010), XII, 112 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-618-7
62. **Politiksznarien für den Klimaschutz V – auf dem Weg zum Strukturwandel, Treibhausgas-Emissionsszenarien bis zum Jahr 2030**  
hrsg. von P. Hansen, F. Chr. Matthes (2010), 276 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-619-4
63. **Charakterisierung Biogener Sekundärer Organischer Aerosole mit Statistischen Methoden**  
von C. Spindler (2010), iv, 163 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-622-4
64. **Stabile Algorithmen für die Magnetotomographie an Brennstoffzellen**  
von M. Wannert (2010), ix, 119 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-623-1
65. **Sauerstofftransport und Degradationsverhalten von Hochtemperaturmembranen für CO<sub>2</sub>-freie Kraftwerke**  
von D. Schlehuber (2010), VII, 139 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-630-9
66. **Entwicklung und Herstellung von foliengegossenen, anodengestützten Festoxidbrennstoffzellen**  
von W. Schafbauer (2010), VI, 164 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-631-6
67. **Disposal strategy of proton irradiated mercury from high power spallation sources**  
by S. Chiriki (2010), xiv, 124 pages  
ISBN: 978-3-89336-632-3
68. **Oxides with polyatomic anions considered as new electrolyte materials for solid oxide fuel cells (SOFCs)**  
by O. H. Bin Hassan (2010), vii, 121 pages  
ISBN: 978-3-89336-633-0

69. **Von der Komponente zum Stack: Entwicklung und Auslegung von HT-PEFC-Stacks der 5 kW-Klasse**  
von A. Bendzulla (2010), IX, 203 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-634-7
70. **Satellitengestützte Schwerewellenmessungen in der Atmosphäre und Perspektiven einer zukünftigen ESA Mission (PREMIER)**  
von S. Höfer (2010), 81 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-637-8
71. **Untersuchungen der Verhältnisse stabiler Kohlenstoffisotope in atmosphärisch relevanten VOC in Simulations- und Feldexperimenten**  
von H. Spahn (2010), IV, 210 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-638-5
72. **Entwicklung und Charakterisierung eines metallischen Substrats für nanostrukturierte keramische Gastrennmembranen**  
von K. Brands (2010), vii, 137 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-640-8
73. **Hybridisierung und Regelung eines mobilen Direktmethanol-Brennstoffzellen-Systems**  
von J. Chr. Wilhelm (2010), 220 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-642-2
74. **Charakterisierung perowskitischer Hochtemperaturmembranen zur Sauerstoffbereitstellung für fossil gefeuerte Kraftwerksprozesse**  
von S.A. Möbius (2010) III, 208 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-643-9
75. **Characterization of natural porous media by NMR and MRI techniques: High and low magnetic field studies for estimation of hydraulic properties**  
by L.-R. Stingaciu (2010), 96 pages  
ISBN: 978-3-89336-645-3
76. **Hydrological Characterization of a Forest Soil Using Electrical Resistivity Tomography**  
by Chr. Oberdörster (2010), XXI, 151 pages  
ISBN: 978-3-89336-647-7
77. **Ableitung von atomarem Sauerstoff und Wasserstoff aus Satellitendaten und deren Abhängigkeit vom solaren Zyklus**  
von C. Lehmann (2010), 127 Seiten  
ISBN: 978-3-89336-649-1

78. **18<sup>th</sup> World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**  
**Proceedings**  
**Speeches and Plenary Talks**  
ed. by D. Stolten, B. Emonts (2010)  
ISBN: 978-3-89336-658-3
- 78-1. **18<sup>th</sup> World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**  
**Proceedings**  
**Parallel Sessions Book 1:**  
**Fuel Cell Basics / Fuel Infrastructures**  
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 460 pages  
ISBN: 978-3-89336-651-4
- 78-2. **18<sup>th</sup> World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**  
**Proceedings**  
**Parallel Sessions Book 2:**  
**Hydrogen Production Technologies – Part 1**  
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 400 pages  
ISBN: 978-3-89336-652-1
- 78-3. **18<sup>th</sup> World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**  
**Proceedings**  
**Parallel Sessions Book 3:**  
**Hydrogen Production Technologies – Part 2**  
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 640 pages  
ISBN: 978-3-89336-653-8
- 78-4. **18<sup>th</sup> World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**  
**Proceedings**  
**Parallel Sessions Book 4:**  
**Storage Systems / Policy Perspectives, Initiatives and Cooperations**  
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 500 pages  
ISBN: 978-3-89336-654-5
- 78-5. **18<sup>th</sup> World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**  
**Proceedings**  
**Parallel Sessions Book 5:**  
**Strategic Analysis / Safety Issues / Existing and Emerging Markets**  
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 530 pages  
ISBN: 978-3-89336-655-2
- 78-6. **18<sup>th</sup> World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**  
**Proceedings**  
**Parallel Sessions Book 6:**  
**Stationary Applications / Transportation Applications**  
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 330 pages  
ISBN: 978-3-89336-656-9

78 Set (complete book series)

**18<sup>th</sup> World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010  
Proceedings**

ed. by D. Stolten, T. Grube, B. Emonts (2010)

ISBN: 978-3-89336-657-6

**79. Ultrafast voltex core dynamics investigated by finite-element  
micromagnetic simulations**

by S. Gliga (2010), vi, 144 pages

ISBN: 978-3-89336-660-6

**80. Herstellung und Charakterisierung von keramik- und metallgestützten  
Membranschichten für die CO<sub>2</sub>-Abtrennung in fossilen Kraftwerken**

von F. Hauler (2010), XVIII, 178 Seiten

ISBN: 978-3-89336-662-0

**81. Experiments and numerical studies on transport of sulfadiazine  
in soil columns**

by M. Unold (2010), xvi, 115 pages

ISBN: 978-3-89336-663-7

**82. Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien  
Charakterisierung radioaktiver Abfälle**

von J.P.H. Kettler (2010), iv, 205 Seiten

ISBN: 978-3-89336-665-1







**Energie & Umwelt / Energy & Environment**  
**Band / Volume 82**  
**ISBN 978-3-89336-665-1**